

**Федеральное агентство по образованию
ГОУ Уральский государственный технический университет -
УПИ
Физико-технический факультет
Кафедра экспериментальной физики**

Метрология ионизирующего излучения

Курс лекций для студентов 5 курса, обучающихся по специальности "Радиационная безопасность человека и окружающей среды"

Лектор

профессор, д.т.н. Жуковский М.В.

Екатеринбург, 2006

| | |
|---|-----|
| ВВЕДЕНИЕ | 4 |
| Глава 1. ОБЩИЕ ПОНЯТИЯ МЕТРОЛОГИИ | 8 |
| 1.1. Физические величины и единицы | 8 |
| 1.2. Измерения физических величин | 12 |
| 1.3. Задачи и содержание метрологической деятельности | 18 |
| Глава 2. МЕТОДИЧЕСКИЕ И МЕТРОЛОГИЧЕСКИЕ АСПЕКТЫ ИЗМЕРЕНИЯ РАДИОАКТИВНОСТИ | 23 |
| 2.1. Радиометрия, ее развитие и задачи | 23 |
| 2.2 Величины и единицы, используемые в радиометрии | 28 |
| 2.3. Общая характеристика методов измерений активности нуклидов | 30 |
| Глава 3. МЕТОДЫ АБСОЛЮТНОГО ИЗМЕРЕНИЯ АКТИВНОСТИ НУКЛИДОВ | 59 |
| 3.1. Метод абсолютного счёта заряженных частиц и фотонов. | 60 |
| 3.1.1. Метод определенного телесного угла. | 60 |
| 3.1.2. Метод 4- π -счета | 100 |
| 3.2. Методы $\alpha\gamma$ - $\beta\gamma$ - и $\gamma\gamma$ -совпадений. | 116 |
| 3.3. Метод ионизационной камеры | 129 |
| 3.4. Калориметрический метод. | 138 |
| 3.5 Измерение активности толстослойного источника бета-излучения | 148 |
| 3.6. Измерение удельной альфа-активности толстых образцов | 152 |
| Глава 4. ОТНОСИТЕЛЬНЫЕ МЕТОДЫ ИЗМЕРЕНИЯ АКТИВНОСТИ НУКЛИДОВ | 156 |
| 4.1. Общие принципы относительных измерений активности | 156 |
| 4.2. Радиометрический метод определения β -излучающих радионуклидов в смеси . | 165 |
| 4.3. Спектрометрический метод измерения активности нуклидов | 169 |
| Глава 5. ИЗМЕРЕНИЕ ОБЪЕМНОЙ АКТИВНОСТИ РАДИОАКТИВНЫХ ГАЗОВ | 181 |
| 5.1. Измерение объемной активности инертных радиоактивных газов методом счета частиц и ионизационным методом | 181 |
| 5.2. Определение выброса в атмосферу ^{131}I | 191 |
| 5.3. Измерение объемной активности трития в воздухе | 193 |
| 5.4. Измерение объемной активности радона в воздухе | 208 |
| Глава 6. ИЗМЕРЕНИЕ ОБЪЕМНОЙ АКТИВНОСТИ РАДИОАКТИВНЫХ АЭРОЗОЛЕЙ | 232 |
| 6.1. Краткая характеристика аэрозолей | 232 |
| 6.2. Условия представительности проб | 234 |
| 6.3. Методы отбора проб аэрозолей | 236 |
| 6.4. Определение эффективности фильтра при измерении α - и β -активных аэрозолей | 244 |
| 6.5. Определение поправки на распад для короткоживущих изотопов | 248 |
| 6.6. Измерение объемной активности ДПР радона в воздухе аспирационным методом | 249 |
| Глава 7. РАДИОМЕТРИЧЕСКИЕ МЕТОДЫ МЕТРОЛОГИИ НЕЙТРОННОГО ИЗЛУЧЕНИЯ | 256 |
| Введение | 256 |
| 7.1. Источники нейтронов | 257 |
| 7.2. Взаимодействие нейтронов с веществом | 261 |
| 7.3 Методы измерения основных характеристик нейтронного поля | 265 |
| 7.3.1. Ионизационные камеры и пропорциональные счётчики | 265 |

| | |
|--|------------|
| 7.3.2 Зарядовые детекторы | 266 |
| 7.3.3. Детекторы, основанные на тепловом эффекте. | 267 |
| 7.3.4 Полупроводниковые детекторы нейтронов..... | 267 |
| 7.3.5 Активационный метод измерения параметров нейтронного поля. | 267 |
| 7.4. Активационные детекторы | 269 |
| 7.4.1. $1/\nu$ - детекторы | 269 |
| 7.4.2. Резонансные детекторы | 271 |
| 7.4.3. Пороговые детекторы..... | 272 |
| 7.5. Измерение параметров полей тепловых нейтронов | 274 |
| 7.6. Определение спектров и потоков быстрых нейтронов..... | 281 |
| Восстановление спектра быстрых нейтронов экспрессным методом | 281 |
| 7.7 Определение выхода радиоактивных нейтронных источников..... | 284 |
| 7.7.1. Метод активации марганца | 284 |
| 7.7.2 Метод активации золотых фольг | 285 |
| Глава 8. СТАТИСТИЧЕСКАЯ ОБРАБОТКА РЕЗУЛЬТАТОВ | |
| РАДИОМЕТРИЧЕСКИХ ИЗМЕРЕНИЙ..... | 287 |
| 8.1. Генеральная и выборочная совокупность. Расчет среднего и дисперсии по выборочным данным..... | 289 |
| 8.2. Статистический характер радиоактивного распада и распределение Пуассона | 291 |
| 8.3. Основные понятия теории интервального оценивания. Оценка генерального среднего на основании выборочных данных | 296 |
| 8.4. Проверка гипотезы о пуассоновском характере распределения результатов измерения радиоактивности | 299 |
| 8.5. Оценка точности результатов косвенных измерений. Закон накопления погрешностей..... | 301 |
| 8.6. Выбор оптимальной продолжительности измерений препарата с фоном и фона | 303 |
| 8.7. Функция для выбора оптимального режима работы радиометрической аппаратуры | 305 |
| 8.8. Обработка результатов эксперимента | 307 |
| 8.9. Оценка погрешности измерений при наличии как неисключенных систематических, так и случайных погрешностей..... | 313 |
| 8.10 Критерии оценивания результатов наблюдений, содержащих грубые погрешности | 319 |
| Библиографический список. | 324 |

ВВЕДЕНИЕ

Измерениями различных характеристик ионизирующих излучений занимается в настоящее время широкий круг специалистов, и этот круг непрерывно расширяется. Работы по ликвидации последствий аварии на Чернобыльской АЭС привели к резкому возрастанию числа таких специалистов, к привлечению людей, еще недавно далеких от вопросов дозиметрии и радиометрии ионизирующих излучений. В этих условиях крайне актуальным является повышение квалификации персонала. Несмотря на использование даже стандартизованных приборов, снабженных инструкциями по эксплуатации, качественная измерительная информация может быть получена зачастую только с применением методик выполнения измерений, учитывающих специфику решаемых задач.

Опыт ликвидации последствий аварии на Чернобыльской АЭС, показал, что в ряде случаев ошибочные результаты измерений получались вследствие использования приборов в тех условиях, когда данный тип прибора неприменим, или вследствие незнания специалистами основ метрологического обеспечения измерений. Это приводило к конфликтным ситуациям, связанным с рассогласованием результатов измерений, выполненных приборами разных типов. Последующий анализ и учет условий выполнения измерений, как правило, показывал согласие результатов в пределах оцененных погрешностей.

Иногда ошибочно отождествляют все, что относится к измерениям, с метрологией. Вплоть до того, что недостаточную оснащенность измерительной техникой какого-либо технологического процесса называют плохим метрологическим обеспечением этого процесса. Это неверно. Необходимо ясно представлять, что *меры по обеспечению единства измерений (метрологическая деятельность) и меры по обеспечению измерительной техникой (приборостроение), - это разные виды работ.*

Метрология есть наука об измерениях, методах достижения их единства и требуемой точности. Конечно, она тесно связана и развивается совместно с измерительной техникой, являющейся разделом прикладной физики. **Измерительные приборы являются объектом исследований метрологии.** Развивая общую теорию измерений, метрология основной упор в своей деятельности делает на исследования способов достижения единства измерений.

Метрология ионизирующих излучений развивается совместно с ядерным приборостроением, используя приемы и методологию общей метрологии, занимается созданием методов и средств обеспечения единства измерений характеристик радионуклидов, потоков излучений и дозиметрических величин.

Под единством измерений будем понимать такое состояние измерений, при котором их результаты выражаются в принятых для соответствующих величин единицах и согласуются между собой на уровне требуемой точности определения этих величин. Такой трактовкой понятия единства измерений поддерживается целостность задачи обеспечения достоверности (правильности) измерений и их единообразия.

В последнее время стали говорить о повышении качества измерений как одной из основных задач метрологии. Под качеством измерений понимается совокупность свойств состояния измерений, обуславливающих получение результатов измерений с требуемыми точностными характеристиками в необходимом виде и в установленный срок. От качества измерительной информации зависит правильность принимаемых решений, часто весьма ответственных. Без качественной информации невозможно управлять таким сложным технологическим процессом, как получение электрической энергии на атомной станции. От качества измерительной информации об активности радионуклидов зависит правильность диагноза при радионуклидной диагностике заболеваний, а от качества информации о поглощенной дозе - эффективность лучевой терапии.

Качество измерительной информации о степени воздействия излучений при испытаниях материалов на радиационную стойкость определяет правильность принимаемого решения о сроках работы наиболее ответственных узлов радиационных установок, длительное время пребывающих в мощных полях излучений. Обоснованность решения о том, браковать или разрешить к использованию партию пищевых продуктов, определяется качеством измерительной информации об удельной или объемной активности этих продуктов. Наконец, от качества измерительной информации об индивидуальной дозе сотрудника зависит обоснованность принимаемого решения о возможности продолжения им работ с источниками ионизирующих излучений или о выборе метода лечения при аварийном облучении. Таким образом, результаты метрологических работ в области измерений ионизирующих излучений оказывают непосредственное влияние на решение экономических, экологических и социальных вопросов, возникающих при использовании атомной энергии.

Исследования в области метрологии ионизирующих излучений в нашей стране имеют историю, охватывающую несколько десятилетий. Определенным этапом в развитии этих работ явилось утверждение в 1969 г. Комитетом стандартов, мер и измерительных приборов шести эталонных комплексов в качестве государственных эталонов СССР. Эталоны были разработаны во ВНИИ метрологии им. Д. И. Менделеева. **Одновременно была утверждена иерархическая соподчиненность (поверочные схемы) эталонов, образцовых мер и рабочих средств измерений массы радия, активности нуклидов, экспозиционной дозы рентгеновского и гамма-излучений, поглощенной дозы бета- и нейтронного излучения, потока нейтронов и плотности потока тепловых нейтронов.**

В метрологической деятельности, направленной на установление в стране единства измерений, проявляются две стороны: **научно-техническая** и **организационно-административная**. Эта специфическая для метрологической деятельности двойственность обусловлена тем, что для метрологической службы необходима не только материально-техническая база в виде эталонов и образцовых средств измерений, но и научная разработка наиболее эффективных в экономическом отношении административно-технических мероприятий и нормативных документов, регламентирующих вопросы испытаний и поверки

измерительных средств, организационные формы, структуру, правовое положение, методы работы метрологических служб, организацию контроля за выполнением требований нормативных документов. Работы по обоснованию организационно-административной деятельности метрологической службы сформировались в отдельную область метрологии - законодательную метрологию.

Практика применения действующих документов, регламентирующих метрологическую деятельность, выявила их основной недостаток, заключающийся в нечетком разделении вопросов на нормативные, требующие жесткой регламентации, и методические, которые могут быть изложены как рекомендательные. Этот недостаток является одним из главных источников "зарегламентированности" метрологической деятельности, препятствующей использованию новых приемов обеспечения единства измерений и сдерживающей оптимизацию метрологической деятельности на нижних ступенях. Среди специалистов в области законодательной метрологии все больше складывается мнение, что документы метрологии должны быть такими, чтобы несоблюдение их было экономически невыгодным ни отдельным лицам, ни предприятиям, ни государству в целом.

Список наиболее употребительных сокращений

- АЗ - активная зона реактора
АМНИ - активационный метод нейтронных измерений
ВМК - ведомственный метрологический контроль
ГКИ - государственные контрольные испытания
ГМН - государственный метрологический надзор
ГПИ - государственные приемочные испытания
ГПС - государственная поверочная схема
ГПЭ - государственный первичный эталон
ГСИ - государственная система обеспечения единства измерений
ГСЭ - государственный специальный эталон
ДНА - нейтронно-активационный детектор
ДПЗ - детектор прямой зарядки
ИИС - измерительная информационная система
ИК - ионизационная камера
ИУС - измерительная управляющая система
ЛПЭ - линейная передача энергии
МВИ - методика выполнения измерений
МХ - метрологические характеристики
НСИ - нестандартизованные средства измерений
НСП - неисключенная систематическая погрешность
НТД - нормативно-техническая документация
ОИ - образцовый источник
ОП - опорное нейтронное поле
ОСИ - образцовое средство измерений
ППД - полупроводниковый детектор
РСД - рекомендуемые справочные данные
РСИ - рабочее средство измерений
РТД - радиационно-термический дивергатор
РЭ - рабочий эталон
СИ - международная система (единиц)
СКО - среднеквадратическое отклонение
СО - стандартный образец
ССД - стандартные справочные данные
ТЗ - техническое задание
ТНД - термонейтронный датчик
УВТ - установка высшей точности
ЯУ - ядерная установка
ЯФУ - ядерно-физическая установка

Глава 1. ОБЩИЕ ПОНЯТИЯ МЕТРОЛОГИИ

1.1. Физические величины и единицы

Для описания окружающих его предметов и явлений (процессов) человек вводит (определяет) различные физические величины. Согласно ГОСТ 16263-70 под физической величиной понимается "свойство, общее в качественном отношении многим физическим объектам (физическим системам, их состояниям и происходящим в них процессам), но в количественном отношении индивидуальное для каждого объекта".

Для того, чтобы можно было установить различия в количественном содержании в каждом объекте свойства, отображаемого данной физической величиной, вводится понятие *размера физической величины*.

Таким образом, измерения есть совокупность действий, совершаемых для количественного сравнения опытным путём конкретного количества данной физической величины с единицей этой величины, т. е. конкретным количеством физической величины того же вида, которому условно приписано числовое значение, равное единице. Цель измерений - получение числового значения измеряемой величины.

Среди всех известных физических величин можно выбрать несколько в качестве независимых величин и установить для них независимые единицы измерений. В этом случае остальные величины могут быть выражены через независимые либо на основании законов, устанавливающих взаимосвязь между независимыми величинами, либо на основании определений физических величин. Независимые величины получили название *основных физических величин*, а величины, выражаемые через них, - *производных физических величин*. Соответствующие единицы измерений называют основными и производными.

Принятая в настоящее время система величин включает в себя семь основных (длина, масса, время, сила электрического тока, термодинамическая температура, количество вещества и сила света), две дополнительных (плоский угол и телесный угол) и большое количество производных величин. Все величины, характеризующие ионизирующие излучения, являются производными.

РД 50-454-84 делит радиационные величины на четыре группы:

- величины, характеризующие ионизирующее излучение и его поле;
- величины, характеризующие взаимодействие ионизирующего излучения с веществом;
- дозиметрические величины;
- радиационные величины, характеризующие источники ионизирующих излучений.

Отметим разную роль, отводимую величинам, определенным в этом документе. Некоторые величины используются как **главные**, характеризующие на окончательном этапе источники и поля излучений. Значения их приписываются различным видам изотопной продукции и радиационной технике. Эти величины служат основной мерой воздействия излучения на различные объекты.

Другие величины являются **вспомогательными** и используются в процессе расчетной или экспериментальной оценки основных величин. Такое деление, однако, условно, т. к. при решении разных задач некоторые величины могут выступать и в качестве главных и как вспомогательные.

Приведем определения некоторых величин, характеризующих ионизирующее излучение и его поле, используемых во всех разделах метрологии ионизирующих излучений. Специальные величины, применяемые в радиометрии, дозиметрии и нейтронных измерениях, будут рассмотрены в соответствующих главах.

Поток ионизирующих частиц определяется как отношение числа ионизирующих частиц dN , проходящих через данную поверхность за интервал времени dt , к этому интервалу:

$$F = \frac{dN}{dt} \quad (1.1)$$

Потоком ионизирующих частиц обычно характеризуют различные радионуклидные источники излучений. В этом случае под поверхностью, входящей в определение величины, понимают замкнутую поверхность, внутри которой находится источник, излучающий, например, фотоны или нейтроны во всех направлениях. Для α - и β -источников на плоских подложках это есть поверхность рабочей части источников. Иногда под потоком частиц понимается число частиц, выходящих в единицу времени из источника, снабженного специальным коллиматором.

Плотность потока ионизирующих частиц определяется как отношение потока частиц dF , проникающих в элементарную сферу, к площади центрального сечения dS этой сферы:

$$\varphi = \frac{dF}{dS} = \frac{d^2 N}{dS dt} \quad (1.2)$$

Эта величина используется для характеристики поля излучения в некоторой его точке, если нас не интересует направление распространения излучения и если энергия отдельных частиц либо известна, либо ее знание несущественно для решения задачи.

Плотностью потока ионизирующих частиц оценивается, например, равномерность нанесения α - и β -радиоактивных веществ на плоские источники. Этой же величиной оценивается степень загрязненности поверхностей радионуклидами при контроле за безопасностью работ с источниками ионизирующих излучений.

Флюенс (перенос) ионизирующих частиц Φ определяется как отношение числа ионизирующих частиц dN , проникающих в элементарную сферу, к площади поперечного сечения dS этой сферы:

$$\Phi = \frac{dN}{dS} \quad (1.3)$$

или как интеграл от плотности потока частиц за время $\Delta t = t_2 - t_1$

$$\Phi = \int_{t_1}^{t_2} \varphi dt \quad (1.4)$$

Эта величина может в некоторых случаях характеризовать степень облучения объектов, помещенных в поле облучения с плотностью потока частиц φ . Для более подробного описания поля излучения используется энергетическо-угловая плотность потока ионизирующих частиц, определяемая как отношение плотности потока φ частиц с энергией от E до $E+dE$, распространяющихся в пределах элементарного угла $d\Omega$, ориентированного в направлении Ω , к энергетическому интервалу dE и этому телесному углу:

$$\varphi(E, \Omega) = \frac{d^4 N}{dS dt dE d\Omega} \quad (1.5)$$

Единицы перечисленных выше величин образуются из единиц телесного угла, энергии, площади и времени. Единицей телесного угла является стерадиан (ср). Для энергии отдельных частиц в соответствии предпочтительной единицей является электрон-вольт (эВ, кэВ, МэВ, ГэВ). Если строго следовать правилам образования производных единиц, в качестве единицы площади необходимо использовать только квадратный метр (m^2), если она стоит в знаменателе производной единицы. Это, однако, неудобная единица, поскольку характеристики поля излучения измеряются в пространствах, характерным размером которых являются сантиметры. Поэтому предпочтительной единицей площади для этих величин является квадратный сантиметр (cm^2). Как правило, единицей времени выбирается секунда (с). Исключением является плотность потока частиц, характеризующая степень радиоактивной загрязненности поверхностей, где в качестве единицы времени рекомендуется использовать минуту (мин). В НРБ-99 числовые значения допустимых уровней радиоактивного загрязнения поверхностей приводятся в частицах, испускаемых в минуту с сантиметра квадратного поверхности, которые легко запоминаются.

Практическое внедрение единиц СИ сталкивается с трудностями, связанными с отказом от применения так называемых счетных единиц, которые входят, в частности, в единицы определенных выше характеристик поля излучения. Вместо потока или плотности потока определенных частиц, например, нейтр/с или α -част./($cm^2 \cdot c$) необходимо писать c^{-1} и $cm^{-2} \cdot c^{-1}$, а конкретизацию того, какие частицы имеются в виду, выносить в текст. К еще большим неудобствам приводит нанесение на шкалы радиометров единиц $cm^{-2} \cdot c^{-1}$ без указания на шкале, какой вид частиц регистрируется. Противники использования счетных единиц выдвигают

гают два основных возражения. Первое заключается в том, что частицы, нейтрон и т. д. являются объектами, а не величинами; второе - в том, что придется вводить в систему единиц большое количество новых. Распады, электроны и др. - это явления или объекты, но число их - уже величина, правда счетная, т. е. выражаемая только целыми числами. Однако и упомянутые выше характеристики поля излучения могут иметь какие угодно целые, дробные и даже трансцендентные значения. В этом отношении рассматриваемые характеристики ничем не отличаются от обычных физических величин. Поскольку счетные единицы инвариантны по отношению ко всем возможным системам единиц, вводить их в систему единиц нет необходимости. Таким образом, ***проблема сводится по существу лишь к способу написания этих единиц.***

Выбор величин, характеризующих объект или процесс, определяется практикой. По мере накопления знаний об окружающих нас явлениях меняются величины, описывающие эти явления, особенно в таких новых областях, как ионизирующие излучения и их взаимодействие с веществом. Идет поиск величин, которые,

- во-первых, наиболее адекватно описывали бы явления или процессы и,
- во-вторых, допускали бы максимально простую процедуру их оценки.

Эволюция радиационных величин дает следующий пример этому. Как указывалось выше, ***знание энергетическо-угловой плотности потока ионизирующих частиц в некоторой области пространства (в каждой ее точке) для всех присутствующих видов излучений, их энергий и направлении распространения частиц позволяет в принципе достаточно полно описать степень воздействия этого излучения на любой объект,*** помещенный в эту область пространства, если известны константы взаимодействия излучения с атомами объекта. Тем не менее, когда необходимо было определять степень воздействия γ - или рентгеновского излучения на объекты, была введена физическая величина - мощность экспозиционной дозы. Эта величина явилась интегральной, однозначно определяемой энергетически-угловой плотностью потока фотонов. На определенном уровне требований к описанию; степени воздействия излучений на вещество она оказалась вполне адекватной, а процедура ее оценки была несравненно более простой, чем определение энергетически-угловой плотности потока фотонов.

В дальнейшем по мере углубления наших сведений о воздействии различных видов ионизирующих излучений на объекты разной природы возникла необходимость введения новых физических величин, характеризующих степень этого воздействия. После недолго просуществовавших величин: физический эквивалент рентгена (фэр) и биологический эквивалент рентгена (бэр) были введены такие величины, как поглощенная доза и эквивалентная доза, более адекватно описывающие степень воздействия излучений на объекты, в том числе на человека. Процесс формирования новых дозиметрических величин в настоящее время продолжается.

1.2. Измерения физических величин

Для практического осуществления измерений необходимо иметь о вещественные (материализованные) единицы физических величин, т. е. меры.

Значения физических величин, для которых установлены меры, находят из опытных данных путем непосредственного сравнения их с мерами или с помощью измерительных приборов, отградуированных по мерам в принятых единицах. Такие измерения называют *прямыми*.

В соответствии с двумя возможностями реализации прямых измерений измерительные приборы подразделяют на две группы:

1. приборы сравнения - компараторы
2. приборы с воплощенной в них градуировочной зависимостью.

Примерами *прямых измерений* могут служить:

1. измерение потока нейтронов источника путем сравнения его с другим источником, для которого значение потока известно;
2. измерение активности радионуклида в пробе сравнением с мерой активности данного нуклида в виде радионуклидного источника.
3. измерение мощности дозы дозиметрическим прибором;
4. измерение плотности потока нейтронов или радиоактивной загрязненности объектов внешней среды радиометрами.

Необходимо помнить, что градуировка дозиметров и радиометров осуществляется при четко определенных условиях. Поэтому всякие отличия условий измерений от условий градуировки могут явиться источниками дополнительных погрешностей результата измерений.

Обычно в техническом описании на прибор оговаривается область применения данного средства измерений, указываются условия его градуировки, а возможные отличия условий измерений в пределах области применения учитываются назначением нормированной дополнительной погрешности. Например, всеволновый радиометр нейтронов РУС-У8 градуируется с помощью плутоний-бериллиевого источника нейтронов. При этом основная погрешность радиометра определена в 20%, а дополнительная погрешность радиометра от различий в энергетических спектрах нейтронного излучения при использовании радиометра в условиях нейтронных полей за защитой ядерно-физических установок оговорена специально и может достигать 20%.

Отметим также, что прямыми являются измерения и с измерительными приборами, на шкалах которых нанесены условные единицы (например, скорость счета импульсов от детектора излучения), а результат измерений получается умножением показаний прибора на известный градуировочный коэффициент, значение которого берется из таблицы, графика или рассчитывается по заданному соотношению.

Отличительным признаком прямых измерений в общем виде является явное или неявное использование меры измеряемой величины.

В практике часто используется термин "*относительные измерения*". Это измерение отношения величины к одноименной величине, играющей роль едини-

цы, или измерение величины по отношению к ее размеру в некоторый момент времени. Как видно, *это понятие полностью соответствует понятию прямого измерения*. В обоих случаях это - **количественное сравнение однородных величин, одна из которых используется в качестве меры**.

Понятно, что для реализации системы измерений величин необходимо обладать прежде всего **мерами основных величин**. Производные величины могут быть найдены на основании уравнений связи или их определений через соответствующие основные величины с применением мер этих основных величин.

Меры производных величин целесообразно создавать при условии, что это не вызывает принципиальных и технических трудностей и оправдано с экономической точки зрения.

В тех случаях, *когда для измерений данной величины создание иди применение меры этой величины нецелесообразно, выполняют косвенные измерения*, при которых **значение искомой физической величины определяют расчетом на основании результатов измерений других величин, связанных с определяемой известным соотношением**.

Примеры косвенных измерений:

1. определение эквивалента дозы ионизирующего излучения по измеренной поглощенной дозе в биологической ткани и известному значению среднего коэффициента качества ионизирующего излучения;
2. определение активности радионуклида в источнике по измеренному внешнему излучению (поток) определенных частиц источника и известным значениям абсолютной интенсивности этого излучения и самопоглощения в источнике;
3. определение флюенса нейтронов по измеренной наведенной активности нейтронно-активационного детектора и известным ядерно-физическим характеристикам реакции взаимодействия нейтронов с ядрами детектора, радиоактивного продукта реакции взаимодействия нейтронов и самого детектора;

Здесь уместно сказать о так называемых **абсолютных измерениях**, под которыми обычно понимают ***косвенные измерения величин в единицах принятой системы единиц, основанные на использовании точных физических законов или аналитических следствий из них***.

Далее упомянем о **совместных измерениях** величин как проводимых одновременно измерениях нескольких (двух или более) неоднородных (различных) величин для отыскания функциональных зависимостей между ними.

В качестве примеров совместных измерений приведем:

1. определение энергетической зависимости эффективности (чувствительности) регистрации фотонов в пике полного поглощения энергии для гамма-спектрометра;
2. определение энергетической зависимости дозиметрического прибора.

К совместным измерениям относят и определение энергетического спектра нейтронов (зависимости от энергии энергетической плотности потока нейтро-

нов) нейтронно-активационным методом, хотя при этом измеряются не отдельно плотность потока и энергия нейтронов, а активационные интегралы, представляющие собой интегральные функционалы, содержащие названные величины.

Важнейшим элементом измерений величин является *средство измерений*, определяемое в ГОСТ 16263-70 как *техническое средство, используемое при измерениях и имеющее нормированные метрологические свойства*. При этом под нормируемыми метрологическими свойствами, прежде всего, следует понимать способность воспроизводить и (или) хранить с необходимой (нормированной) точностью единицу соответствующей физической величины. **Технические средства, используемые при измерениях, метрологические характеристики которых не нормированы, называют индикаторами.**

Перечислим основные виды средств измерений.

Мера физической величины - средство измерений, предназначенное для воспроизведения физической величины заданного размера.

Радионуклидный источник ионизирующего излучения может рассматриваться как мера активности нуклида в нем или как мера потока (внешнего излучения) ионизирующего излучения. Область пространства, где присутствует ионизирующее излучение от радионуклидного источника или от ядерно-физической установки может использоваться в качестве меры плотности потока частиц или мощности экспозиционной дозы излучения.

Специальным видом мер являются **стандартные образцы** веществ или материалов (СО) - образцы веществ или материалов с установленными в процессе метрологической аттестации значениями одной или более физических величин, характеризующих свойства или состав данного вещества или материала.

Радионуклидный источник с определенным радионуклидом, аттестованный по активности нуклида в источнике и используемый для градуировки радиометрической и спектрометрической аппаратуры, по существу является СО таких свойств радионуклида, как активность, вид и энергия излучения. Стандартными образцами состава и свойств веществ (материалов) являются химические детекторы излучения, используемые в дозиметрии ионизирующих излучений, а также нейтронно-активационные детекторы, применяемые для измерений характеристик нейтронных полей.

Измерительный прибор - средство измерений, предназначенное для получения значений измеряемой величины в форме, доступной для непосредственного восприятия оператором.

К этому виду средств измерений ионизирующих излучений относятся многочисленные дозиметрические приборы и радиометры - массовые средства измерений, используемые для оценки радиационных условий труда, контроля загрязненности объектов и среды и в других областях деятельности.

Продолжим рассмотрение видов средств измерений. **Измерительная установка** - совокупность функционально объединенных мер, измерительных при-

боров и вспомогательных устройств, расположенных в одном месте и предназначенных для измерений одной или нескольких величин.

Измерительной установкой, например, является нейтронный радиометр на основе активационного принципа измерений (УРН), включающий набор нейтронно-активационных детекторов и аппаратуру для измерений их наведенной активности.

Измерительную установку с включенными в нее образцовыми средствами измерений называют поверочной установкой.

Примерами поверочных установок могут служить УПГД - установка для проверки гамма-дозиметров с комплектом источников фотонного излучения и УКПН - установка с коллимированным пучком нейтронов для проверки нейтронных радиометров и дозиметров.

Наряду с разработкой приборов, детекторы которых встроены в измерительный пульт, все шире используется блочно-модульный способ построения средств измерений. Это позволяет проектировать многофункциональные приборы и установки на основе типовых унифицированных конструкций, обеспечивая взаимозаменяемость узлов. В соответствии с такой идеологией промышленность производит унифицированные блоки и устройства детектирования ионизирующих излучений, представляющие собой измерительные преобразователи.

Измерительный преобразователь - техническое средство, имеющее нормированные метрологические характеристики, предназначенное для преобразования измеряемой величины в другую величину или сигнал измерительной информации, удобный для последующей обработки, преобразования и передачи на расстояние.

Не следует рассматривать как средства измерений ионизирующих излучений ионизационные камеры, газоразрядные счетчики, сцинтилляторы и другие детекторы излучения, хотя все они имеют нормированные технические характеристики, необходимые для контроля их работоспособности и качества при изготовлении и эксплуатации.

Детекторы ионизирующих излучений - чувствительные элементы измерительных преобразователей градуировке (поверке) подлежат, как правило, в составе измерительного прибора (установки), в котором используется соответствующий блок детектирования. Тем более что один и тот же детектор может применяться для измерений различных величин. Например, сцинтилляционный детектор используется и в дозиметрическом приборе, и в радиометре, и в спектрометрической установке.

Отметим еще один вид средств измерений - измерительные системы.

Измерительная система - совокупность функционально объединенных мер, измерительных приборов, измерительных преобразователей и других технических средств, размещенных в разных местах исследуемого объекта с целью измерений одной или нескольких физических величин, свойственных этому объекту. Измерительные системы в зависимости от назначения разделяют на измерительные информационные (ИИС) и измерительные управляющие (ИУС).

Приведем некоторые понятия, связанные с метрологическими характеристиками средств измерений и их нормированием.

Метрологические характеристики средств измерений – характеристики свойств средств измерений, оказывающих влияние на результаты и погрешности измерений: Номенклатура нормируемых метрологических характеристик (МХ) средств измерений и способы их нормирования установлены ГОСТ 8.009-84. Важнейшими МХ средства измерения являются **характеристика преобразования (или значение меры)**, **основная погрешность** и **функции влияния внешних факторов на погрешность средства измерений**.

Следует различать два понятия: номинальные и действительные МХ средств измерений.

Номинальные МХ - характеристики, присваиваемые данному средству измерений *как типу*. Номинальные параметры нормируются для типа средств измерений, и *все экземпляры средств измерений данного типа имеют одинаковые номинальные параметры*.

Каждый экземпляр средств измерений обладает своими индивидуальными действительными МХ. Существенно, что *действительные МХ находятся в пределах допусков значений номинальных характеристик*.

В соответствии с таким разделением МХ различают два рода метрологической деятельности.

Метрологическая аттестация средств измерений - исследование МХ средств измерений, чтобы установить действительные МХ. При этом *в свидетельстве приводят действительные параметры средств измерений и погрешности их определения (погрешности аттестации)*.

Проверка средств измерений - определение погрешности данного экземпляра средства измерений с целью проверить соответствие требованиям нормативно-технической документации (НТД) на него. В этом случае *в свидетельстве указывается только соответствие номинальным МХ*.

Характеристики преобразования средств измерений могут задаваться в виде шкалы измерительного прибора, а также в виде графика, таблицы или аналитического выражения, ставящих значение сигнала измерительной информации в зависимость от значения измеряемой величины. Отметим некоторые существенные понятия, связанные с характеристикой преобразования средства измерения.

Диапазон измерений - область значений измеряемой величины, для которой нормируются погрешности средства измерений.

Диапазон показаний - область значений измеряемой величины, ограниченная начальным и конечным значениями шкалы отсчетного устройства средства измерений.

Предел измерений - наибольшее или наименьшее значение диапазона измерений.

Чувствительность - отношение изменения сигнала на выходе средства измерений к вызывающему его изменению измеряемой величины. Следует обратить

внимание, что это - дифференциальная характеристика преобразования средства измерений, в общем случае определяемая для каждой точки диапазона измерений. Она имеет постоянное значение в случае линейной характеристики преобразования средства измерений. *Следует также отметить неправильное использование данного понятия для обозначения нижнего предела измерений.*

В общем виде **погрешность средства измерений** - это отклонение его действительной характеристики преобразования от номинальной.

Абсолютная погрешность средства измерений - разность между показанием средства измерений и действительным (истинным) значением измеряемой величины (разность между номинальным и действительным значением величины - для меры), выражаемая в единицах измеряемой величины.

Относительная погрешность средства измерений - отношение абсолютной погрешности к показанию средства измерений (номинальному значению - для меры). Она обычно выражается в процентах.

Приведенная погрешность средства измерений - отношение абсолютной погрешности к некоторому условно принятому значению величины, указываемому в техническом описании данного средства измерений.

Предел допускаемой погрешности средства измерений - наибольшая без учета знака погрешность (абсолютная или относительная) средства измерений, при которой оно может быть признано исправным и допущено к применению.

Выделяют основную и дополнительные погрешности средств измерений, что связано с понятиями нормальные и рабочие условия его применения.

Нормальные условия применения средства измерений - условия, при которых все влияющие на показания средства измерений величины находятся в пределах значений, установленных в НТД на данное средство измерений в качестве нормальных. Для нормальных условий применения нормируется основная погрешность средства измерений, причем нормируется для совокупности всех влияющих величин.

Рабочие условия применения средства измерений - диапазон значений влияющих величин (каждой в отдельности), для которых нормируются дополнительные погрешности средства измерений при отклонении их за пределы нормальной области значений. Дополнительные погрешности нормируются для каждой влияющей величины в отдельности.

По метрологическому назначению средства измерений подразделяются на две группы: имеющие метрологические функции по воспроизведению единиц физических величин и передаче их размеров другим средствам измерений - **эталоны и образцовые средства измерений**, и **рабочие средства измерений**, которые применяются для технических измерений и не несут метрологических функций.

Сущность такого разделения средств измерений не в их конструкции и даже не в точности, а в назначении. В принципе только средства измерений самой низкой точности не могут быть образцовыми. Однако, исходя именно из необходимости выполнения функций по хранению и передаче размеров единиц, да-

леко не каждое средство измерений целесообразно использовать в качестве образцового. Важнейшим качеством образцового средства измерений является его повышенная стабильность, характеризующая неизменность метрологических характеристик средства измерений с течением времени.

Системы воспроизведения единиц и передачи их размеров рабочим средствам измерений могут быть централизованными и децентрализованными. В централизованной системе единица физической величины воспроизводится одним исходным средством измерений - государственным эталоном и передается всем средствам измерений данной величины, применяемым в стране. При децентрализованной системе единица физической величины воспроизводится в требуемом месте (регионе, предприятии) методом косвенных измерений с помощью образцовых средств измерений других величин, функционально связанных с измеряемой. Исходные поверочные установки, применяемые для этих целей и имеющие наивысшую для данного вида измерений точность, называются установками высшей точности (УВТ).

В качестве государственных эталонов утверждаются первичные (ГПЭ) и специальные (ГСЭ) эталоны. Первичные эталоны воспроизводят единицы в условиях, при которых это можно сделать с наивысшей точностью.

Для передачи размеров единиц средствам измерений, применяемым в особых условиях (большие и малые энергии, специальные среды, высокие температуры и др.) или в диапазоне значений физических величин, в которых передача размеров единиц от ГПЭ с требуемой точностью невозможна, создаются специальные эталоны.

1.3. Задачи и содержание метрологической деятельности

Метрологическая деятельность направлена на развитие и совершенствование метрологического обеспечения, под которым понимается установление и применение научных и организационных основ, технических средств, правил и норм, необходимых для достижения единства измерений. Таким образом, метрологическое обеспечение является обобщенным понятием, включающим широкий круг вопросов научного, технического, организационного и правового характера.

Научной основой метрологического обеспечения является *метрология - наука об измерениях, методах и средствах обеспечения их единства и способах достижения требуемой точности*. В некоторых публикациях, посвященных метрологической деятельности, понятие метрология используется вместо понятия метрологическое обеспечение. Такая подмена понятий вряд ли правомерна, поскольку метрология является лишь одной из составных частей метрологического обеспечения.

Материально-техническую основу метрологического обеспечения составляют государственные первичные и специальные эталоны, вторичные эталоны и установки высшей точности, образцовые средства измерений и стандартные образцы. Организационной основой метрологического обеспечения является мет-

рологическая служба, состоящая из государственной и ведомственной метрологических служб.

Наконец, правовые вопросы в области метрологической деятельности регулирует Закон о единстве измерений.

Главным звеном метрологического обеспечения являются государственные первичные и специальные эталоны, которые воспроизводят и (или) хранят единицы соответствующих физических величин с наивысшей в стране точностью. В СССР функционируют государственные эталоны как основных единиц СИ, так и многих производных единиц этой системы. В области измерений ионизирующих излучений имеются государственные эталоны, которые хранятся в НПО "Всесоюзный научно-исследовательский институт метрологии им. Д. И. Менделеева" (НПО ВНИИМ) и НПО "Всесоюзный научно-исследовательский институт физико-технических и радиотехнических измерений" (НПО ВНИИФТРИ).

Государственные испытания средств измерений. Существуют два вида государственных испытаний: приемочные и контрольные. Государственные приемочные испытания (ГПИ) проводятся на опытных образцах средств измерений новых типов, предназначенных для серийного производства, а также на образцах средств измерений, подлежащих ввозу из-за границы партиями. По решению министерства (ведомства), согласованному с Госстандартом СССР, допускается проводить ГПИ на образцах из установочной серии. ГПИ проводят по программе, утвержденной метрологическим институтом Госстандарта.

Основными задачами ГПИ являются:

- установление соответствия средств измерений современному техническому уровню, требованиям народного хозяйства, технического задания, а также требованиям проекта технических условий;
- проверка нормированных МХ и возможность их контроля при серийном производстве; оценка возможности проведения поверки в соответствии с НТД на методики поверки испытуемых средств измерений.

Положительные результаты ГПИ являются основанием для утверждения типа, серийного производства и разрешения выпуска средств измерений в обращение. Типы средств измерений, утвержденные Госстандартом, вносятся в государственный реестр средств измерений, прошедших государственные испытания.

Для средств измерений медицинского назначения (СИМН) существует несколько отличный порядок прохождения испытаний и их утверждения. Он заключается в том, что СИМН подвергают помимо ГПИ еще и медицинским испытаниям. Решение о внесении СИМН в Госреестр и его выпуске принимают по результатам как ГПИ, так и медицинских испытаний. К средствам медицинской техники, подлежащим ГПИ (а следовательно, и медицинским испытаниям), относят радиометры и дозиметры. Здесь следует оговорить, что медицинским испытаниям подвергают не все используемые в медицинской практике

радиометры и дозиметры, а только те из них, которые определяют активность радионуклидов в препаратах, используемых в лечебных или диагностических целях, и дозиметры, применяемые в лучевой терапии.

Государственным контрольным испытаниям (ГКИ) подвергают как серийно выпускаемые средства измерений, так и средства измерений, периодически ввозимые из-за границы партиями. Основаниями для проведения испытаний являются:

- истечение срока действия разрешения, выданного на серийное производство (ввоз из-за границы партиями);
- выпуск установочной серии;
- внесение в конструкцию средства измерений изменений, влияющих на нормированные МХ;
- проверка соответствия выпускаемых или периодически ввозимых из-за границы партиями средств измерений утвержденным типам и требованиям НТД.

В задачу ГКИ входит проверка соответствия средств измерений утвержденному типу, требованиям стандартов или техническим условиям метрологического обеспечения производства, их соответствия требованиям народного хозяйства и современному техническому уровню. Положительные результаты ГКИ являются основанием для продолжения их серийного производства и выпуска в обращение в СССР.

Метрологическая аттестация нестандартизованных средств измерений (НСИ). К НСИ относятся:

- средства измерений, выпуск которых осуществляется единичными экземплярами;
- средства измерений, ввозимые из-за границы единичными экземплярами;
- средства измерений серийного производства, применяемые в условиях, отличающихся от условий, для которых нормированы их метрологические характеристики;
- средства измерений, предназначенные для применения в системе Госстандарта;
- средства измерений, используемые в качестве исходных образцовых средств измерений в ведомственных метрологических службах.
- Установки, собранные из серийно выпускаемых блоков, также следует относить к НСИ. К таким установкам относятся, в частности, спектрометрические установки, собираемые потребителем из блоков детектирования, усилителей, многоканальных амплитудных анализаторов.

Определение МХ НСИ осуществляется в индивидуальном порядке в процессе их метрологической аттестации. Ей предшествует разработка программы и методики аттестации. Метрологическая аттестация осуществляется органами Госстандарта (государственная метрологическая аттестация) и ведомственными метрологическими службами под научно-методическим руководством и надзором органов Госстандарта (ведомственная метрологическая аттестация).

Поверка средств измерений. Поверка средств измерений делится на государственную и ведомственную. Государственная поверка проводится органами государственной метрологической службы, ведомственная поверка - органами ведомственных метрологических служб.

Обязательной государственной поверке подлежат:

средства измерений, применяемые в органах метрологической службы;
 средства измерений, предназначенные для учета материальных ценностей, топлива и энергии, защиты природной среды, обеспечения безопасности труда, и некоторые другие. В частности, государственной поверке подлежит дозиметрическая и радиометрическая аппаратура, по показаниям которой делается заключение о степени радиационного воздействия на человека. Конкретный перечень такой аппаратуры, используемой предприятием, согласуется с местным органом государственной Метрологической службы.

Различают следующие виды поверок: первичная, периодическая, внеочередная, инспекционная и экспертная. Первичной поверке подлежат средства измерений при выпуске из производства и ремонта. Периодической поверке подлежат средства измерений, находящиеся в эксплуатации или на хранении, через определенные межповерочные интервалы. Внеочередную поверку проводят в ряде случаев, в основном когда возникает необходимость удостовериться в пригодности к применению средств измерений. Инспекционную поверку проводят в рамках надзора за состоянием измерительной техники. Наконец, экспертную поверку проводят при возникновении спорных вопросов по метрологическим характеристикам средств измерений, пригодности их к применению.

Поверка средств измерений осуществляется по нормативным документам (стандартам методов и средств первичной и периодической поверок) или по методикам поверки, изложенным в НТД на конкретный тип прибора.

Метрологическая аттестация методик выполнения измерений (МВИ). За последнее время заметно повысился интерес к метрологической аттестации МВИ, которые являются по сути исследованиями, направленными на определение значений показателей точности измерений, выполняемых в соответствии с данной методикой. Аттестацию методик и оформление аттестатов проводят как метрологические организации Госстандарта СССР, так и органы ведомственных метрологических служб. МВИ для типовых измерений на серийной аппаратуре и в заданных условиях могут быть стандартизованы. При этом стандартизуются назначение и область применения МВИ, требования к средствам измерений, необходимым для выполнения измерений, метод измерений, алгоритм операций подготовки и выполнения измерений, нормы на показатели точности измерений, способы обработки результатов измерений и оценки показателей точности измерений, требования к квалификации операторов и технике безопасности. *Во всех других случаях стандартизация МВИ нецелесообразна и вместо нее следует проводить метрологическую аттестацию МВИ.* Аттестация проводится по программе, утверждаемой руководителем организации, проводящей аттестацию. Эта программа составляется на основании анализа объектов

измерения, используемой потребителем аппаратуры, диапазона измерений, требуемой точности измерений и т. д.

Государственный надзор и ведомственный контроль за средствами измерений. Важная роль в общей задаче обеспечения единства измерений в стране принадлежит государственному метрологическому надзору (ГМН) и ведомственному метрологическому контролю (ВМК) за средствами измерений. ГМН осуществляют в форме:

- государственных приемочных и контрольных испытаний;
- государственной метрологической аттестации средств измерений;
- государственной поверки средств измерений;
- регистрации предприятий и организаций, изготавливающих, ремонтирующих и поверяющих средства измерений в соответствии с порядком, устанавливаемым Госстандартом СССР;
- проверок состояния и применения средств измерений, деятельности ведомственных метрологических служб в министерствах (ведомствах) и на предприятиях, внедрения и соблюдения метрологических правил.

ВМК проводят в форме:

- ведомственной метрологической аттестации средств измерений;
- ведомственной поверки средств измерений;
- проверок состояния и применения средств измерений, внедрения и соблюдения метрологических правил на предприятиях министерства (ведомства);
- проверок деятельности головных и базовых организаций метрологической службы, подразделений метрологической службы на предприятиях отрасли;
- аттестации испытательных и аналитических лабораторий на предприятиях министерства (ведомства).

Глава 2. МЕТОДИЧЕСКИЕ И МЕТРОЛОГИЧЕСКИЕ АСПЕКТЫ ИЗМЕРЕНИЯ РАДИОАКТИВНОСТИ

2.1. Радиометрия, ее развитие и задачи

Радиометрия является одним из основных разделов метрологии в области ионизирующих излучений, в задачу которого входит разработка методов и средств точных измерений количественных характеристик радиоактивных источников излучений с целью обеспечения единства и правильности этих измерений.

Проблема измерения количеств радиоактивных веществ возникла вскоре после открытия в 1896 г. А. Беккерелем самопроизвольного испускания солями урана" проникающего излучения, сходного по своим свойствам с рентгеновским излучением, открытым годом ранее. Это явление, обнаруженное затем у ряда других элементов, получило название радиоактивности. Огромный размах исследований, предпринятых Пьером и Марией Кюри, А. Дебьерном, Э. Резерфордом, Ф. Содди и многими другими учеными, ставившими своей целью поиски новых радиоактивных элементов, изучение природы радиоактивности и законов радиоактивного распада, настоятельно требовал обеспечения возможности сравнивать и сопоставлять результаты измерений, полученные в разных лабораториях. Для решения задачи необходимо было, прежде всего, выбрать физическую величину, связанную с количеством радиоактивного вещества, установить единицу ее измерения, создать эталоны, воспроизводящие эту единицу, и разработать методы практических измерений, иными словами, создать новый раздел метрологии.

После открытия в 1898 г. супругами Кюри радия и получения первых дециграммов хлористого радия (М. Кюри, 1902 г.) этот элемент в сравнительно короткий срок получил широкое распространение в качестве основного радиоактивного источника ионизирующего излучения. Поэтому внимание ученых было обращено в первую очередь на решение проблемы измерения количеств радия.

Наиболее простым и естественным казалось определять количество радия в препаратах в единицах массы. Очевидно также, что измерение этой величины путем непосредственного взвешивания не могло осуществляться в повседневной практике по целому ряду причин, например:

- а) радиевые препараты обычно заключены в герметичные ампулы, и извлечь радий из них невозможно без вскрытия ампул;
- б) количество радиевой соли в препаратах обычно не велико и составляет миллиграммы или микрограммы;
- в) трудно полностью очистить радиевую соль от примеси солей бария.

Необходимы были косвенные методы определения массы радия в радиевых препаратах. Таким методом явилось так называемое гамма-взвешивание, т. е. сравнение двух радиевых препаратов по интенсивности γ -излучения, которая, как это было установлено М. Кюри, пропорциональна массе радия, содержащегося в препарате.

В соответствии с этим Международный конгресс по электричеству и радиологии, собравшийся в 1910 г. в Брюсселе, постановил, что количество радия в радиевых препаратах следует измерять, сравнивая их по интенсивности γ -излучения с радиевым препаратом, содержащим известное количество радия, выраженное в миллиграммах, и принятым за эталон, выражая результат измерения в миллиграмм-эквивалентах радия. Одновременно было решено поручить изготовление первичных международных радиевых эталонов М. Кюри и О. Хенигшмиду.

В 1911 г. эти эталоны были изготовлены. Эталон, изготовленный М. Кюри в Институте радия в Париже, содержал 21,99 мг чистого безводного хлорида радия, или 16,739 мг радия-элемента, заключенного в стеклянную ампулу диаметром 1,45 мм, длиной 32 мм, при толщине-стенки 0,27 мм. Радий был выделен М. Кюри из иохимстальской руды и перед тем был использован для определения атомного веса радия, найденного равным 225,97. Чистота соли проверена с помощью спектрального анализа, причем следов бария не было обнаружено.

О. Хенигшмид в Радиевом институте в Вене изготовил препарат, содержащий 31,17 мг чистого безводного хлорида радия в запаянной стеклянной ампуле диаметром 3,2 мм, длиной 30 мм, при толщине стенок 0,27 мм. Атомный вес радия, определенный в процессе изготовления эталона, был найден равным 225,97. Эталоны были сравнены между собой в Париже.

Международный конгресс по радиологии и электричеству в Брюсселе в 1912 г. утвердил эталон, изготовленный М. Кюри, в качестве первичного международного эталона единицы массы радия, а эталон, изготовленный О. Хенигшмидом, — в качестве основной копии первичного эталона. Первичный эталон решено было хранить в Институте радия в Париже, копию в Радиевом институте в Вене.

Радиевые препараты, сходные по своим характеристикам с парижским и венским международными эталонами и сравненные с ними, аттестовывали в качестве вторичных международных эталонов и распределяли между различными государствами для использования в качестве национальных радиевых эталонов. По ним калибровали все радиевые препараты, применявшиеся в каждой отдельной стране. Таким образом было обеспечено единство измерений массы радия в радиевых препаратах во всем мире.

Сравнительно просто и однозначно была решена также задача измерения количества радона — первого дочернего продукта распада радия. Для измерения количества радона Международным конгрессом по электричеству и - радиологии в 1910 г. была установлена единица кюри, названная в честь первооткрывателей радия и определенная как «количество радона, находящегося в радиоактивном равновесии с одним граммом радия». Количество радона также измеряли относительным методом, сравнивая радоновые ампулы с радиевыми эталонами по γ -излучению с помощью ионизационных камер. Возможность использования такого метода измерения обусловлена тем, что радон и, радий, находящиеся в радиоактивном равновесии со своими короткоживущими продуктами распада,

испускают практически одинаковое по спектральному составу γ -излучение. Как известно, у излучение радиевых источников принадлежит по существу не самому радю, а главным образом двум его дочерним нуклидам — радю-В и радю-С, тогда как сам радий испускает лишь сравнительно «мягкое» γ -излучение с энергией квантов $0,186 \text{ Мэв}$, легко поглощающееся фильтрами и стенками камер.

В 1930 г. определение кюри было расширено и распространено на остальные продукты распада радия. Теперь под кюри подразумевалось количество любого элемента семейства радия, находящегося в радиоактивном равновесии с 1 г радия. Значительно сложнее решалась проблема измерения количеств радиоактивных элементов, не принадлежащих к семейству радия. В силу ряда принципиальных трудностей невозможно было изготовить и использовать таким же образом соответствующие эталоны, содержащие известные количества этих элементов. Поэтому препараты из радиоактивных элементов, испускающих γ -излучение, стали сравнивать с радиевыми эталонами, выражая результат измерения в миллиграмм-эквивалентах радия, как и при сравнении радиевых препаратов. Но если результат сравнения радиевых препаратов с радиевыми эталонами, выраженный в миллиграмм-эквивалентах радия, довольно близко совпадал с массой радия в этих препаратах в миллиграммах, то результат измерения препаратов радиоэлементов, не относящихся к семейству радия, выраженный в миллиграмм-эквивалентах радия, ничего не говорил о количестве радиоактивного вещества в препарате, а указывал значение величины, названной впоследствии радиевым γ -эквивалентом. В дальнейшем эту методику стали применять и для измерения γ -источников из искусственных радиоактивных нуклидов.

Применение такой методики измерений нельзя было признать удачным. Вследствие различия в составе спектров γ -излучения измеряемого радионуклида и радия результаты измерений сильно зависели от условий измерений — от типа, размеров и материала стенок детектора (ионизационной камеры или газоразрядного счетчика), от предварительной фильтрации излучения и геометрических условий измерения. Лишь в некоторых случаях, при измерении с помощью ионизационных камер со стенками из воздушно-эквивалентного материала, можно по результату измерений в миллиграмм-эквивалентах радия оценить γ -постоянную измеряемого препарата, опираясь на γ -постоянную радия, равную $8,25 \text{ P}/(\text{ч}\cdot\text{мг})$ на расстоянии 1 см .

Наконец, по самому своему определению единица миллиграмм-эквивалент радия была неприменима для измерений радионуклидов, не испускающих γ -излучения. Между тем число таких нуклидов было довольно велико, а с открытием искусственной радиоактивности возросло во много раз.

В этой ситуации, применяя для количественных измерений любых радионуклидов единицу кюри, видоизменили ее определение. Поскольку многочисленные измерения числа актов распада в 1 г радия в 1 сек давали значения, группировавшиеся около $3,7 \cdot 10^{10}$, единицу кюри стали трактовать как количество лю-

бого радиоактивного нуклида в котором в 1 сек происходит $3,7 \cdot 10^{10}$ актов распада. Международная комиссия по радиевым эталонам сначала возражала против такого определения, но это не приостановило использования кюри в указанном смысле, так как никакой другой подходящей единицы не было. Предложенная в 1946 г. единица «резерфорд», определенная как количество радиоактивного нуклида, в котором в 1 сек происходит 10^6 распадов, не смогла успешно конкурировать с единицей кюри, уже широко применяемой. Поэтому в 1950 г. Комиссия по единицам, эталонам и константам в области радиоактивности узаконила приведенное выше определение кюри. Хотя к тому времени стало очевидным, что число распадов в 1 сек в 1 г радия значительно отличается от значения $3,7 \cdot 10^{10}$, было решено не изменять определения кюри в дальнейшем при получении более точных и достоверных значений скорости распада радия. Данное определение кюри, как единицы количества радионуклида, было принято и Международной комиссией по радиологическим единицам и измерениям на сессии 1956 г.

Более логичным и рациональным явилось определение кюри как единицы активности радионуклида в радиоактивном источнике, данное советскими метрологами в 1952—1953 гг. при разработке проекта ГОСТ 8848—58 на единицы рентгеновского и γ -излучений и радиоактивности. В этом стандарте единица кюри была определена как «активность препарата данного изотопа, в котором в 1 сек происходит $3,700 \cdot 10^{10}$ актов распада». В 1962 г. к подобной формулировке пришла и Международная комиссия по радиологическим единицам и измерениям, определив кюри как единицу **активности** радионуклида, а не его **количества**.

Таким образом, в настоящее время радиометрия повсеместно перешла от понятия «количество радиоактивного вещества», в большинстве случаев недоступного точному определению, к понятию «активность радионуклида в источнике», характеризующему основное свойство радиоактивного вещества — способность распадаться с определенной, присущей каждому отдельному нуклиду скоростью. Лишь для радиевых источников по-прежнему измеряют массу радия, поскольку в данном случае эта величина может быть определена точнее и проще, чем активность, благодаря наличию соответствующих, тщательно изготовленных эталонов,

Создание вещественных первичны эталонов единицы активности различных радионуклидов не представляется ни возможным, ни целесообразным по ряду соображений. Масса радионуклида, как было показано выше, связана со скоростью его распада через постоянную распада, в большинстве случаев не известную с необходимой точностью; поэтому точность создаваемого вещественного эталона единицы активности данного нуклида будет ограничена прежде всего точностью значения постоянной его распада. Далее, радионуклид, из которого намечено изготовить эталон, должен быть тщательно очищен от всех примесей, в том числе от неактивных продуктов его распада и от других изотопов данного элемента, что представляет значительные технические трудности. Наконец, по-

требуется изготовить вещественные первичные эталоны единицы активности всех радионуклидов, применяемых на практике, а число их в настоящее время исчисляется уже сотнями и имеет тенденцию к дальнейшему росту. Кроме того, созданные однажды эталоны следует время от времени, по мере распада соответствующих нуклидов, возобновлять. Следует заметить также, что идея создания вещественных первичных эталонов противоречит современной тенденции перехода на «естественные» эталоны.

Разработкой единиц измерений величин в области ионизирующих излучений занимается Международная комиссия по радиационным единицам и измерениям (МКРЕ), созданная в 1925 году. Главная задача этой комиссии состоит в разработке приемлемых для всех стран рекомендаций по выбору величин и единиц ионизирующих излучений и радиоактивности, выбору оптимальных методов измерения и применения этих величин и физических данных, необходимых при использовании данных методов. МКРЕ вырабатывает также рекомендации о величинах, единицах и методах измерений в области радиационной защиты, согласовывая свою деятельность с Международной комиссией по радиологической защите.

Обеспечение единообразия и правильности измерений основных радиометрических характеристик радиоактивных образцов — активности нуклида и массы радия — требует осуществления комплекса метрологических работ и мероприятий, включающего:

- а) разработку и унификацию единиц измерения основных величин — активности нуклида и массы радия;
- б) создание, активное хранение и совершенствование первичных эталонов единиц радиоактивности с наивысшей на данном уровне развития точностью и в нужном диапазоне значений измеряемой величины; сохранение размера воспроизводимой единицы в течение возможно более длительного периода времени;
- в) разработку и осуществление системы, методов и образцовых средств передачи размера единиц с наивысшей возможной точностью от первичных эталонов к применяемым на практике радиоактивным источникам излучений, радиоактивным образцам и измерительным приборам — радиометрам;
- г) разработку необходимой нормативной документации — государственных стандартов и методических указаний, регламентирующих порядок, методы и средства передачи размера единиц;
- д) создание системы государственной поверки радиоактивных источников и радиометров, применяемых в различных отраслях народного хозяйства.

Решение всех этих задач осуществляется Государственной метрологической службой.

2.2 Величины и единицы, используемые в радиометрии

Проблема измерения радиоактивности возникает во многих областях, где применяются источники ионизирующих излучений. Методы измерения радиоактивности нашли применение при поиске и добыче полезных ископаемых, технологических процессах с использованием облучательных аппаратов, при эксплуатации ядерных энергетических установок, производстве радиоактивного сырья, в медицине. Одним из главных вопросов охраны окружающей среды является контроль за содержанием радиоактивных веществ и их миграцией в атмосфере, почве, растительности. По содержанию радионуклидов устанавливаются цены на радионуклидные препараты. Санитарно-гигиенические нормы для работников, использующих радиоактивные источники и препараты, устанавливаются из расчета определенного содержания конкретных радионуклидов на рабочих местах.

Разнообразие направлений, где приходится иметь дело с измерением радиоактивности, и специфика решаемых при этом задач ставит перед этой областью измерений ряд требований.

1. Обеспечение измерений количественных характеристик радиоактивных веществ в широком диапазоне их значений, достигающем 10-12 порядков. Например, при определении содержания калия в минеральном сырье по радиоактивному калию-40, находящемуся в известной связи с общим количеством калия, необходимо обеспечить измерение всего нескольких распадов в секунду на грамм вещества. В то же время в источниках из кобальта-60 для мощных радиационных установок число актов распада превышает 10^{12} в секунду на грамм вещества.
2. Обеспечение измерений количественных характеристик радионуклидов, находящихся в различном агрегатном состоянии.
3. Радиоактивное вещество может находиться в твердом, жидком или газообразном состоянии. Кроме того, радионуклиды могут образовывать радиоактивные аэрозоли широкого дисперсного состава.
4. Обеспечение измерений широкой номенклатуры радионуклидов, имеющих различные схемы распада.
5. Обеспечение требуемой точности измерений. Диапазон допустимой погрешности измерений количественных характеристик радиоактивных веществ довольно широк и зависит от поставленной задачи. В тех случаях, когда измерения носят оценочный характер, а главным требованием к ним является экспрессность, погрешность измерений 50-60% может считаться достаточной. Однако имеются задачи, где требования к погрешности измерений весьма высоки. Это характерно для научных исследований, в частности при уточнении ядерно-физических характеристик радионуклидов, в метрологической деятельности при измерении характеристик образцовых источников, в медицине при использовании радионуклидных методов лечения и

диагностики. В этих случаях допустимая погрешность измерений составляет 0,5—3%.

Характеризовать количество радиоактивного вещества его массой, как это отмечалось выше, сложно и нецелесообразно по ряду причин. Более удобным и доступным оказалось выразить это количество через число происходящих в нем распадов. Эта характеристика получила название «активность радионуклида в источнике (образце)» или сокращенно — «активность радионуклида». Под активностью радионуклида A понимается отношение числа ΔN спонтанных переходов из определенного ядерно-энергетического состояния радионуклида, происходящих в источнике (образце) за интервал времени Δt , к этому интервалу времени:

$$A = \frac{\Delta N}{\Delta t} \quad (2.1)$$

Единицей активности радионуклидов в СИ является один распад в секунду, получивший название беккерель (Бк). На практике еще продолжает применяться внесистемная единица — кюри (Ки). Соотношение между кюри и беккерелем:

$$1 \text{ Ки} = 3,700 \cdot 10^{10} \text{ Бк (точно).}$$

Подчеркнем, что ΔN в (2.1) является суммой всех ядерных превращений, происходящих в образце. Так, при распаде ядер ^{64}Cu 37% всех распадов приходится на β^- -распад, 18% — на β^+ -распад и 45% — на электронный захват. Таким образом, вклад в общую активность, который дают β^- -, β^+ - и ϵ -распады, составит 37, 18 и 45% соответственно. По этой причине не следует употреблять довольно часто используемые в научно-технической литературе выражения « α -активность», « β -активность» и, тем более, « γ -активность». Более уместно говорить в таких случаях об активности α -излучающих источников (α -источников), активности β -излучающих источников (β -источников) и т. д.

Следует также отметить, что разные источники, изготовленные на основе одного и того же радионуклида, в зависимости от их назначения могут применяться как источники с разным типом излучения, например Ra как α -источник или как γ -источник, ^{60}Co как β -источник или как γ -источник.

Поскольку радиоактивные вещества могут находиться в различных физических состояниях, наряду с основным понятием активности используются производные от нее величины.

Удельная активность источника A_m — отношение активности радионуклида в источнике (образце) к массе m источника (образца) или к массе элемента, соединения:

$$A_m = A/m \quad (2.2)$$

Единицей этой величины является беккерель на килограмм (Бк/кг). Допускается также использование таких единиц, как Бк/г, кБк/г, МБк/г, ГБк/г, ТБк/г.

Объемная активность источника A_V — отношение активности радионуклида в источнике к его объему V :

$$A_V = A/V \quad (2.3)$$

Основная единица этой величины — беккерель на кубический метр (Бк/м³). Используются также единицы Бк/мл, кБк/мл, МБк/мл, ГБк/мл, Бк/л, кБк/л, МБк/л.

Поверхностная активность источника A_s — отношение активности A радионуклида в источнике, распределенной на поверхности источника, к площади S этой поверхности:

$$A_s = A/S \quad (2.4)$$

Она выражается в беккерелях на квадратный метр (Бк/м²). Допускается также выражать эту величину в следующих единицах: Бк/см², кБк/см², МБк/см², ГБк/см².

Вторым по важности параметром радиоактивного источника можно назвать внешнее излучение частиц, испускаемых источником, $F_{вн}$. Под внешним излучением $F_{вн}$ понимается число частиц данного вида или фотонов, испускаемых источником в единицу времени в определенный телесный угол. Единицей этой величины является с⁻¹ или одна частица в секунду. Обычно внешнее излучение относят к телесному углу $2\pi\text{sr}$ (для α - и β -источников) и $4\pi\text{sr}$ (для γ -источников).

Внешнее излучение как весьма важную характеристику радионуклидных источников часто приводят в паспортах на образцовые и рабочие источники. Внешнее излучение совпадает с потоком частиц в случае, когда поле создается одним источником, все внешнее излучение которого пересекает поверхность, входящую в определение потока частиц. Измеряемой величиной может быть также плотность потока ионизирующих частиц. Измерения активности источников, производных от нее величин, внешнего излучения, потока и плотности потока частиц составляют содержание радиометрии ионизирующих излучений.

2.3. Общая характеристика методов измерений активности нуклидов

Методы абсолютных измерений. Методы абсолютных измерений активности будут достаточно подробно рассмотрены далее, поэтому ограничимся лишь краткой информацией о них.

Метод абсолютного счета заряженных частиц и фотонов основан на знании числа частиц или фотонов, испускаемых при каждом акте распада нуклида, и их регистрации в выбранном телесном угле. Существует несколько разновидностей этого метода: метод определенного телесного угла, метод 4π -счета, метод счетчиков внутреннего наполнения.

Метод определенного телесного угла применяется в основном при измерении α -излучения и низкоэнергетического фотонного излучения (1-80 кэВ). При этом используются пропорциональные счетчики, сцинтилляторы из ZnS, тонкие кристаллы из CsI, а также полупроводниковые детекторы. Минимальная погрешность измерений активности оценивается в 0,1% для α -излучения и 1% для фотонного излучения. Менее перспективен данный метод для измерения активности по β -излучению, поскольку наличие большого числа поправочных коэффициентов увеличивает погрешность метода до 5-10%.

Метод 4π-счета предназначен для измерения активности α- и р-излучающих нуклидов. Он реализуется с помощью счетчиков Гейгера — Мюллера, пропорциональных 4π-счетчиков, монокристаллических сцинтилляционных детекторов, а также детекторов на основе жидких сцинтилляторов. Погрешность определения удельной активности α- и β-излучателей при использовании пропорциональных счетчиков оценивается в 0,3—0,5%, а с помощью жидких сцинтилляторов 0,2—0,3% (для β-излучателей с $E_{\beta\text{макс}} > 150$ кэВ) и 0,05—0,1% (для α-излучателей). Для низкоэнергетических β-излучателей погрешность измерения активности составляет 1—3%.

Метод счетчиков внутреннего наполнения, или метод внутреннего газового счета, применяется для измерения активности нуклидов с малой энергией β-частиц (^3H , ^{14}C , ^{25}S и др.). Используются пропорциональные счетчики, в которых предусмотрены меры по исключению концевоего эффекта. Погрешность измерения активности низкоэнергетических β-излучателей составляет примерно 1% [28].

Метод совпадений используется для измерения активности нуклидов, распад которых сопровождается испусканием одного или нескольких фотонов γ- или рентгеновского излучения. При измерении активности этим методом регистрируются совпадения между α-частицами и фотонами (αγ-совпадения), между двумя γ-квантами (γγ-совпадения), между β-частицами и фотонами (βγ-совпадения) и т. д. Данный метод реализуется с помощью установок совпадений, имеющих два измерительных канала, в каждом из которых используется детектор с максимальной чувствительностью к одному виду излучения. Измерительные каналы работают как в самостоятельном режиме, так и в режиме совпадений.

Для наиболее простого случая, когда распад осуществляется с испусканием одной частицы, сопровождаемой одним фотоном, активность определяется по формуле

$$A = I_1 I_2 / I_{1,2} \quad (2.5)$$

где I_1 — скорость счета частиц в измерительном канале 1; I_2 — скорость счета фотонов в измерительном канале 2; $I_{1,2}$ — скорость счета частиц и фотонов в режиме совпадений.

Для нуклидов с более сложной схемой распада формула (2.5) усложняется, и в ней появляются члены, зависящие от эффективности регистрации детекторами соответствующих видов излучения и параметров схемы распада. Метод совпадений широко используется в метрологической практике многих стран. Анализ результатов, полученных с помощью метода совпадений и его разновидностей, позволяет сделать заключение о том, что он может обеспечить измерение активности α-излучающих нуклидов с погрешностью 0,1—0,3%, β- γ-излучающих нуклидов — 0,2-1%, электронозахватных нуклидов — 1-2%.

Метод ионизационной камеры основан на ионизационном эффекте, создаваемом излучением в рабочем объеме ионизационной камеры. Для случая, ко-

гда излучение полностью поглощается в газе ионизационной камеры, активность рассчитывается по формуле

$$A=IW/eE \quad (2.6)$$

где I — сила ионизационного тока в цепи камеры; W — средняя энергия ионообразования; e — заряд электрона; E — энергия α -частиц или средняя энергия β -частиц.

Метод применим и для измерения активности γ -излучающих нуклидов. Отметим, что в этом случае камера должна быть отградуирована по образцовому источнику или раствору, и, следовательно, метод не будет абсолютным. Метод ионизационной камеры используется для измерения активности в диапазоне 10^6 — 10^9 Бк. Хотя метод и не обеспечивает высокой точности, он применяется в тех случаях, когда требуется быстрое определение активности, а также в качестве контрольного при сравнении результатов измерений, полученных различными абсолютными методами.

Калориметрический метод основан на физическом явлении, заключающемся в выделении энергии при радиоактивном распаде. При помещении радиоактивного препарата в калориметр последний будет нагреваться за счет поглощения в его объеме выделяемого тепла. Активность источника связана с тепловой мощностью J , переданной калориметру, следующим соотношением

$$A=J/(kE) \quad (2.7)$$

где E — энергия, освободившаяся при одном акте распада; k — коэффициент, учитывающий степень поглощения излучения в стенке калориметра.

Метод наиболее перспективен при измерении больших активностей (10^9 — 10^{12} Бк), где использование других методов затруднено из-за больших погрешностей в определении мертвого времени, эффектов наложения импульсов и т. д. Калориметрический метод нашел достаточно широкое применение. При соответствующем подборе калориметров и измерительных устройств он может обеспечить измерение активности α -излучающих нуклидов с погрешностью 0,2—0,5%, β -излучающих нуклидов — 0,8—1,5%, γ -излучающих нуклидов 1—3%. Погрешность определения активности β -излучающих нуклидов в основном определяется погрешностью, с которой установлены значения средней энергии β -частиц.

Электростатический метод основан на измерении электрического заряда, накопленного на изолированном источнике за счет уноса из него заряда противоположного знака α - или β -частицами. Зная заряд, накопленный источником за определенное время, и тип распада, можно определить активность нуклида в источнике. Поскольку этот метод не имеет каких-либо преимуществ перед другими методами измерений и, кроме того, имеется ряд сложностей в его реализации, он не нашел широкого применения.

Анализ методов абсолютных измерений активности нуклидов показывает, что ни один из них не является универсальным. Каждый метод обладает своими

достоинствами и недостатками. Поэтому выбор того или иного метода должен осуществляться с учетом различных факторов: диапазона измеряемых активностей, особенностей схем распада, физико-химического состояния радиоактивного образца, требуемой точности измерений и т. д.

Методы относительных измерений. Абсолютные методы измерений активности и производных от нее величин сложны, поскольку методики выполнения таких измерений требуют тщательного анализа источников систематической погрешности и способов их устранения или учета. Абсолютные методы, как правило, реализуются с помощью прецизионных установок, имеющих зачастую уникальный характер и предназначенных для эксплуатации в лабораторных помещениях, отвечающих определенным требованиям. Правильность работы с такими установками может быть обеспечена специалистами высокой квалификации. Поэтому абсолютные методы измерений используются лишь в научных исследованиях и в метрологической практике. В последнем случае абсолютные методы, как будет показано ниже, реализуются в эталонных установках.

Во всех других случаях используют методы относительных измерений. Эти методы значительно проще в практической реализации, методика измерения в них не требует анализа и оценки источников погрешности в том объеме, как это требуется для абсолютных методов. Средства измерений, реализующие такие методы, отличаются простотой работы с ними и сравнительно невысокой стоимостью.

Отметим, что все методы абсолютных измерений активности можно сделать относительными, если градуировку приборов и установок осуществлять с помощью образцов с известным содержанием радионуклида. В наиболее простом варианте, когда градуировочный образец и исследуемый источник аналогичны по технологии изготовления и конструкции и содержат один и тот же радионуклид, данные средства измерения представляют собой компарирующее устройство, выполняющее измерение по формуле

$$A_x = A_0(I_x/I_0) \quad (2.8)$$

где A_x , A_0 — активности измеряемого источника и градуировочного образца (образцового источника) соответственно; I_x , I_0 — зарегистрированные эффекты за один и тот же промежуток времени от измеряемого и образцового источников соответственно.

Средства, реализующие методы относительных измерений активности радионуклидов и производных от нее величин (радиометрические приборы и установки, далее — радиометры) подразделяются на радиометры активности радионуклида в источнике, удельной активности радионуклида, удельной активности радионуклида в жидкости, объемной активности радионуклида в газе, объемной активности радиоактивного аэрозоля, поверхностной активности радионуклида, потока ионизирующих частиц, плотности потока ионизирующих частиц и многофункциональные радиометры, измеряющие две или более физические величины. Кроме того, каждый тип радиометра подразделяется на груп-

пы в зависимости от регистрируемого излучения (альфа-, бета-, гамма-радиометр).

К основным параметрам радиометров ГОСТ 4.59—79 относят диапазон измеряемой активности или производных от нее величин, предел допускаемой основной погрешности или основную погрешность при доверительной вероятности, равной 0,95, чувствительность, энергетическую зависимость чувствительности, нестабильность показаний, уровень собственного фона.

Одним из основных метрологических параметров радиометра, измеряющего активность радионуклидов, является чувствительность к определенному радионуклиду. Под чувствительностью p_{0i} понимается отношение скорости счета радиометра (за вычетом скорости счета фоновых импульсов) к активности стандартного образца (образцового источника), который по своим радиационно-физическим характеристикам и геометрическим размерам адекватен измеряемым на данном радиометре образцам:

$$p_{0i} = N_{0i} / A_{0i} \quad (2.9)$$

Индекс i характеризует принадлежность к определенному радионуклиду.

Определение p_{0i} производят при разработке прибора и проверяют на этапе государственных приемочных испытаний. Обычно значение p_{0i} устанавливают для ряда различных радионуклидов, находящихся в определенных состояниях (в источнике на твердой подложке, растворе и т. д.). Для некоторых типов радиометров указывается их энергетическая зависимость, т. е. зависимость чувствительности от энергии регистрируемых частиц.

Контроль за чувствительностью при поверке радиометров обычно осуществляют с помощью серийно выпускаемых образцовых источников на твердой подложке. Для этого в НТД на радиометры вводят переходный коэффициент, являющийся отношением чувствительности радиометра по образцовому источнику p_{ki} к p_{0i} :

$$k_n = p_{ki} / p_{0i} \quad (2.10)$$

Обеспечение единства измерений активности нуклидов

Эталоны и поверочные схемы.

Государственный эталон единицы массы радия. Международный эталон единицы массы радия. В течение многих лет (с 1928 по 1969 г.) государственным эталоном единицы массы радия служил радиевый образец № XI — вторичный международный эталон, изготовленный в 1927 г. Этот эталон, равно как и его копия — образец № X, изготовленный одновременно с ним, были сличены с первичным международным радиевым эталоном, изготовленным в 1911 г. в Париже Марией Кюри, и с основной копией международного эталона, изготовленной в том же году в Вене О. Хенигшмидом. Образцы № XI и X были снабжены сертификатами Международной комиссии по радиевым эталонам, подписанными председателем этой комиссии Э. Резерфордом и членами комиссии — М. Кюри и С. Мейером.

Уже в начале тридцатых годов возникли опасения за сохранность международных радиевых эталонов 1911 г. ввиду возможности их самопроизвольного разрушения под действием накопившихся в ампулах этих эталонов газов — гелия и хлора, образующихся постепенно в результате радиоактивного распада радия и его дочерних продуктов. По оценке Ф. Жолио-Кюри давление газов внутри ампулы парижского эталона 1911 г. достигло к 1934 г. значения 17 кг/см^2 . Кроме того, стенки стеклянных ампул радиевых эталонов (толщиной $0,27 \text{ мм}$) с течением времени утрачивают первоначальную прочность под действием излучений.

Будучи обеспокоена за судьбу международного радиевого эталона, а также за сохранность национальных эталонов различных стран, многие из которых были изготовлены в десятых и начале двадцатых годов, Международная комиссия по радиевым эталонам обратилась к О. Хенигшмиду, работавшему в то время в университете г. Мюнхена, с просьбой изготовить некоторое количество новых эталонов из радиевой соли, которую он использовал в тот период для определения атомной массы радия. Эта соль, выделенная из катангской руды и представлявшая собой по химическому составу хлорид радия была тщательно очищена Хенигшмидом от посторонних примесей, причем спектральный анализ показал, что примесь бария в этой соли составляла менее $0,002\text{—}0,003\%$ по числу атомов. Следует отметить также, что *значение атомной массы радия 226,05, определенное О. Хенигшмидом в ходе этой работы, до настоящего времени не подвергается ревизии.*

Из этой соли Хенигшмид приготовил 20 навесок и поместил их в стеклянные ампулы внутренним диаметром 3 мм , толщиной стенок $0,27 \text{ мм}$ и длиной около 40 мм . Ампулы были запаяны во второй половине дня 2 июня 1934 г. Изготовленные таким образом эталоны получили номера с 5421 до 5442 (№ 5423 и 5439 были пропущены). По сравнению с международными эталонами 1911 г. ампулы новых эталонов имели значительно больший свободный объем, благодаря чему давление газов внутри ампул не должно было возрастать чрезмерно быстро.

Один из изготовленных эталонов (№ 5430) был выбран в качестве нового первичного международного радиевого эталона, подлежащего хранению в Париже. В течение четырех лет этот эталон был сравнен с парижским и венским эталонами 1911 г. [152]. Эталон № 5428 был передан Институту радия в Вене для замены старого эталона-копии 1911 г. Остальные эталоны были распределены между различными странами для замены прежних национальных эталонов или оставлены в резерве для той же цели. Советскому Союзу в 1956 г. был предоставлен эталон № 5427.

До прекращения деятельности Международной комиссии по радиевым эталонам в 1948 г. эталоны Хенигшмида, переданные различным странам, снабжались сертификатами этой комиссии, в которых были указаны два значения массы радия: определенное Хенигшмидом при изготовлении эталона путем взвешивания соли и определенное в результате сличения данного эталона с парижским и венским эталонами 1911 г. Расхождение между этими значениями в ряде

случаев было больше ожидаемого, и нужно было решить, какому следует отдать предпочтение. Если основным считать значение, полученное в результате сличения с парижским и венским эталонами 1911 г., то придется признать, что эти два эталона остаются первичными международными эталонами; если же принимать за основное значение массы радия, определенное Хенигшмидом путем взвешивания соли, то оно не зависит ни от международных эталонов 1911 г., ни от нового международного эталона № 5430. В том и другом случаях роль эталона № 5430 в качестве международного представляется сомнительной.

В 50-х годах в ряде метрологических лабораторий были проведены тщательные взаимные сличения эталонов Хенигшмида с помощью ионизационных камер и калориметров. Анализ результатов этих сличений показал, что масса радия в эталонах была определена Хенигшмидом при их изготовлении весьма тщательно и надежно. Было установлено также, что *эталон Хенигшмида образует связанную и внутренне согласованную систему, способную существовать и при отсутствии новых первичных международных эталонов № 5430 и 5428, выбранных к тому же совершенно произвольно и по точности определения массы радия не превосходящих остальные эталоны этой системы.*

Эти соображения были доложены У. Б. Манном (НБС США) совещанию Специальной рабочей группы, назначенной Консультативным комитетом по эталонам Для измерения ионизирующих излучений и собравшейся в Мюнхене 17 июля 1959 г. Группа приняла следующую рекомендацию, утвержденную затем (в 1960 г.) Консультативным комитетом, а также Международным комитетом мер и весов:

«Специальная рабочая группа рекомендует, чтобы нормализованная система радиевых эталонов Хенигшмида 1934 г. рассматривалась в качестве исходной для всех относительных эталонирований и калибровок радия. Для всех практических целей в настоящее время это будет выполнено путем принятия масс, определенных Хенигшмидом для этих эталонов, применяемых в качестве национальных или международных эталонов».

Международные эталоны № 5430 и 5428 занимают в нормализованной системе особое место, так как они были тщательно сличены с международными эталонами 1911 г. и, кроме того, с ними были сличены другие эталоны Хенигшмида, переданные разным странам; многие из эталонов Хенигшмида связаны со всей нормализованной системой только через эталоны № 5430 и 5428. Поэтому Специальная рабочая группа рекомендовала, чтобы *хранение эталона № 5430 осуществляло Международное бюро мер и весов.* Эта рекомендация в настоящее время выполняется.

Так как Советский Союз присоединился к цитированной выше рекомендации Специальной рабочей группы при условии, что советский эталон № 5427 будет включен в состав нормализованной системы, (ранее эталон № 5427 не был сличен с другими эталонами Хенигшмида), то такое сличение Международное бюро мер и весов провело в 1963—1964 гг. в Лаборатории Кюри Института радия (Париж), Федеральном физико-техническом институте (Брауншвейг, ФРГ) и в

Институте радия и ядерных исследований (Вена). Эталон № 5427 был сличен с эталонами № 5426, 5430, 5422, 5428 и 5438 с помощью ионизационных камер по γ -излучению и с помощью калориметров — по α - и β -излучению. Результаты сличения приведены в табл. 2.1.

Таблица 2.1

Результаты сличения массы радия в эталонах Хенигшмида

| Лаборатория | Метод | Масса радия в эталонах, мг | | | | | | Среднее квадратическое отклонение, % |
|------------------|-------|----------------------------|--------|--------|--------|--------|--------|--------------------------------------|
| | | 5426 | 5430 | 5427 | 5428 | 5422 | 5438 | |
| Мюнхен | В | 14,608 | 16,922 | 21,283 | 23,407 | 24,785 | 38,060 | — |
| Различные [158] | | 14,614 | 16,935 | — | 23,428 | — | — | — |
| Лаборатория Кюри | К | 14,627 | 16,967 | 21,273 | — | 24,795 | 37,988 | 0,13 |
| ПТБ | К | 14,621 | 16,949 | 21,283 | — | 24,797 | 38,035 | 0,10 |
| | И | 14,612 | — | 21,279 | — | 24,785 | — | 0,02 |
| | И | 14,613 | — | 21,279 | — | 24,785 | — | 0,03 |
| Институт радия | И | — | — | 21,269 | 23,407 | — | — | 0,04 |

Примечание. В — взвешивание; К — калориметр; И — ионизационная камера.

Как видно из приведенных в табл. 2.1 данных, масса радия в эталоне № 5427, определенная в результате сличений, совпадает с отклонением в пределах 0,07% со значением, определенным Хенигшмидом. У других эталонов, участвовавших в этом сличении, отклонения также не превышают 0,05—0,07%, кроме эталона № 5430, у которого расхождение достигает 0,27%. Оно не является, впрочем, неожиданным, принимая во внимание результаты других сличений этого же эталона.

В результате сличения была осуществлена связь эталона № 5427 с нормализованной системой эталонов Хенигшмида, т. е. с первичным международным эталоном единицы массы радия, что явилось необходимой предпосылкой к утверждению эталона № 5427 в качестве нового государственного эталона единицы массы радия. Другой необходимой предпосылкой к утверждению эталона № 5427 государственным эталоном единицы массы радия было сличение его с прежним государственным эталоном-образцом № XI и эталоном-копией — образцом № X. Это сличение было проведено с помощью эталонных установок УЭА-4 и УЭА-5. В результате найдено, что значения массы радия в образцах № XI и X, определенные по соотношению с образцом № 5427, превышают значения, указанные в сертификатах на эти образцы, в среднем на 0,3—0,5%. Принимая во внимание, что сличения образцов проводились многократно и притом двумя существенно различными методами (ионизационным и калориметрическим), наличие какой-либо неучтенной систематической погрешности представляется маловероятным.

В связи с этим можно отметить, что при сравнении эталонов Хенигшмида № 5437 и 5440 с парижским и венским международными эталонами 1911 г. также наблюдалось подобное расхождение: значения массы радия в эталонах Хенигшмида превышали на 0,3—0,5% значения, определенные по международным эталонам 1911 г., по которым в 1927 г. были аттестованы и наши эталоны № XI и X. Таким образом, по-видимому, существует расхождение 0,3—0,4% между размерами единицы «миллиграмм радия», воспроизводимой прежним государственным эталоном № XI и новым эталоном № 5427.

Государственный эталон единицы массы радия. Государственный эталон единицы массы радия утвержден Комитетом стандартов, мер и измерительных приборов при Совете Министров СССР 13 мая 1969 г. Этот эталон должен быть отнесен к категории специальных.

Государственным эталоном единицы массы радия — миллиграмма радия — является эталонный комплекс средств измерений, в состав которого входят:

- образец радия, носящий знак 5427 и служащий для воспроизведения единицы массы радия;
- две эталонные установки УЭА-4 и УЭА-5, служащие для передачи размера единицы массы радия от эталона № 5427 вторичным эталонам.

Образец радия № 5427, изготовленный О. Хенигшмидом 2 июня 1934 г. вместе с 19 другими подобными образцами, образует вместе с ними нормализованную систему радиевых эталонов — международный первичный эталон единицы массы радия.

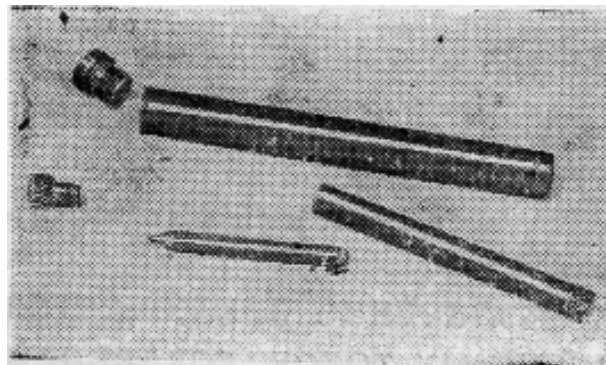


Рис. 2.1. Радиевый образец № 5427 - Государственный эталон единицы массы радия (образец извлечен из футляров)

Образец № 5427 содержит 27,96 мг чистого безводного хлорида радия в ампуле из тюрингенского стекла внутренним диаметром 3 мм и толщиной стенок 0,27 мм. Образец заключен в две съемные металлические ампулы. Масса радия-226 в образце, определенная при его изготовлении прямым взвешиванием (с помощью тщательно поверенных гирь) и подтвержденная результатами международного сличения, равна 21,283 мг на дату изготовления образца. Пересчет этого значения на последующие даты осуществляют по формуле радиоактивного распада с использованием значения периода полураспада 1610 лет.

Эталонная установка УЭА-3 имеет в своем составе *две ионизационные камеры*, одна из которых предназначена для воспроизведения единицы активности γ -излучающих нуклидов (описание этой камеры и всей установки приведено в соответствующей главе). Вторая камера, предназначенная для сличения радиевых эталонов, состоит из *двух концентрически расположенных свинцовых сфер* — наружные диаметры этих сфер 160 и 240 мм, толщина стенок 2 см. В остальной конструкции камеры не отличается от описанной выше первой камеры. Измеряемый эталонный образец помещают в центре внутренней сферы на тонкой алюминиевой пластине. Испускаемое образцом в полном телесном угле 4π γ -излучение фильтруется стенкой внутренней сферы и создает ионизацию в пространстве между сферами, измеряемую электрометрическим устройством. Выбор конструкции камеры, материала и толщины ее стенок обусловлен следующими соображениями. Фильтрация γ -излучения радия стенкой внутренней сферы практически полностью исключает вклад в измеряемую ионизацию низкоэнергетической составляющей γ -спектра, принадлежащей собственно радю и радю-В и сравнительно сильно поглощающейся в радиевой соли и в стенках ампулы. Некоторое уменьшение чувствительности камеры компенсируется использованием излучения измеряемого источника в телесном угле 4π ; кроме того, это делает менее критичной установку источника в центре камеры (допустимо смещение центра источника на 5 - 6 мм от центра камеры) и уменьшает влияние его размеров.

Чувствительность камеры составляет около $1,6 \cdot 10^{-11}$ А/мг. Уровень естественного фона $(3—5) \cdot 10^{-13}$ А. Таким образом, с помощью данной камеры можно сравнивать радиевые эталоны, содержащие не менее 0,1—0,3 мг радия.

Для сличения радиевых эталонов по α -излучению используют калориметр АК-1 эталонной установки УЭА-5. Чувствительность калориметра 1,406 мм/мквт. Тепловой эффект для радия (с учетом только легко поглощаемых излучений) равен 150,3 мквт/мкюри Ра. Принимая во внимание, что с погрешностью до 2% активность радия в милликюри численно равна массе радия в миллиграммах, и считая, что при точных измерениях отклонение гальванометра в цепи термопар не должно быть менее 20 мм, получаем, что нижний предел измерения массы радия с помощью эталонной установки УЭА-5 составляет 0,1 мг.

Поверочная схема для средств измерений массы радия. Во главе поверочной схемы для средств измерений массы радия (рис. 2.2) стоит Государственный специальный эталон единицы массы радия.

Размер единицы массы радия, воспроизводимой государственным эталоном, передается вторичным эталонам, аттестуемым в ранге рабочих эталонов. Рабочими эталонами единицы массы радия могут служить закрытые радиевые источники и растворы радия в стеклянных ампулах, изготовленные в соответствии со специальными техническими условиями, согласованными с ВНИИМ, и сличенные с государственным эталоном. Рабочие эталоны единицы массы радия хранят и применяют во ВНИИМ.

От рабочих эталонов размер единицы массы радия следует передавать образцовым гамма-источникам из радия и образцовым растворам радия, изготовленным по специальным техническим условиям, согласованным с ВНИИМ. Эти образцовые средства измерений подразделяются на два разряда. Образцовые источники и образцовые растворы 1-го разряда следует поверять относительным методом путем сравнения с соответствующими рабочими эталонами единицы массы радия с помощью установок с ионизационными камерами или со счетчиками. Подобным же образом необходимо передавать размер единицы массы радия от образцовых источников и образцовых растворов радия 1-го разряда образцовым источникам и образцовым растворам радия 2-го разряда, и от них — рабочим источникам и растворам радия.

Образцовые источники и образцовые растворы радия 1-го разряда подлежат хранению и применению в институтах и лабораториях государственной метрологической службы и в головных ведомственных поверочных лабораториях, 2-го разряда — в лабораториях государственного надзора (ЛГН), в ведомственных поверочных лабораториях и на промышленных предприятиях.

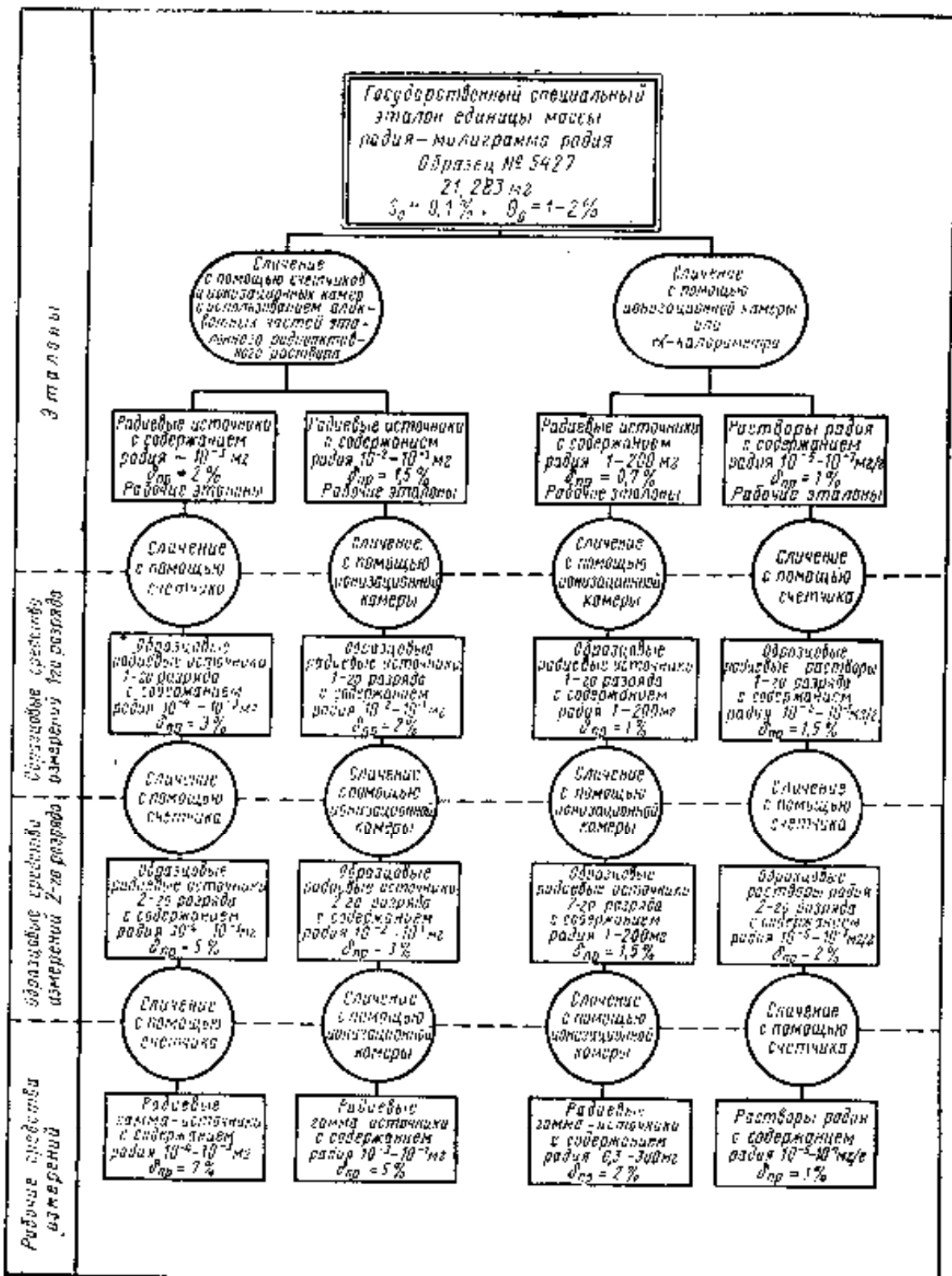


Рис. 2.2. Поверочная схема для средств измерений массы радия

Основой системы обеспечения единства измерений применяемых в радиометрии величин является *Государственный первичный эталон активности радионуклидов*. Государственный эталон состоит из шести эталонных установок активности (УЭА). Такой состав эталона обусловлен как различием в схемах распада аттестуемых нуклидов, так и большим диапазоном их активностей.

Таблица 2.1. Основные характеристики некоторых установок

| Тип установки | Используемый метод измерения | Вид радиоактивного препарата | Диапазон активности для источников, Бк; для растворов, Бк/г | Оценка СКО, % | Оценка НСП, % |
|---------------|--|--|---|-----------------------------------|----------------------------------|
| УЭА-1 | Метод 4лβ-счета с использованием 4лβ-счетчика под давлением и проточного 4л-счетчика | Растворы β-излучающих нуклидов | $1 \cdot 10^4 \div 1 \cdot 10^8$ | $0,01 \div 0,1$ | $0,1 \div 0,7$ |
| | Метод 2лβ-счета с использованием двойного 2л-счетчика под давлением | Источники β-излучения | $10 \div 1 \cdot 10^5$ | $0,05 \div 1,0$ | $2,0 \div 3,0$ |
| УЭА-2 | Метод 4ла-счета с использованием проточного 4л-счетчика | Растворы α-излучающих нуклидов | $1 \cdot 10^4 \div 1 \cdot 10^8$ | $0,02 \div 0,2$ | $0,1 \div 0,75$ |
| | Метод 2ла-счета с использованием двойного 2л-счетчика | Источники α-излучения | $5 \cdot 10^{-2} \div 1$ $1 \div 1 \cdot 10^5$ | $0,2 \div 2,0$ $0,05 \div 1,0$ | $0,7 \div 1,2$ $0,5 \div 2,6$ |
| | Метод ограниченного телесного угла с использованием счетчика с малым телесным углом | | $1 \cdot 10^5 \div 1 \cdot 10^7$ | $0,02 \div 0,2$ | $0,1 \div 1,3$ |
| УЭА-3 | Метод 4лаγ- и 2лаγ-совпадений | Растворы радионуклидов со сложной схемой распада | $1 \cdot 10^4 \div 1 \cdot 10^6$ | $0,05 \div 0,2$ | $0,15 \div 0,6$ |
| | Метод 4лβγ-совпадений | | | | |
| | Метод 4л(X+e)γ-совпадений | Источники специального назначения | $1 \cdot 10^5 \div 1 \cdot 10^8$ | $0,05 \div 0,2$ | $0,15 \div 1,5$ |
| | Метод 2лXγ-совпадений | | | | |
| | Метод быстрого | | | | |

Продолжение табл. 2.1

| Тип установки | Используемый метод измерения | Вид радиоактивного препарата | Диапазон активности для источников, Бк; для растворов, Бк/г | Оценка СКО, % | Оценка НСП, % |
|---------------|---|---|---|--|--|
| УЭА-4 | медленных совпадений в малом телесном угле Метод ионизационной камеры | Источники излучения γ - | $1 \cdot 10^6 \div 1 \cdot 10^9$ | $0,1 \div 0,2$ | 2,2 |
| УЭА-5 | Калориметрический метод с использованием калориметров различных конструкций | Источники излучения α - Источники излучения β - Источники излучения γ - | $1 \cdot 10^7 \div 5 \cdot 10^{12}$ $1 \cdot 10^8 \div 5 \cdot 10^{12}$ $1 \cdot 10^9 \div 2 \cdot 10^{11}$ | $0,1 \div 0,2$ $0,1 \div 0,2$ $0,1 \div 0,2$ | 0,1 $0,14 \div 1,0$ $0,2 \div 0,6$ |
| УЭА-6 | Метод 4лХ-счета с использованием 4л-счетчика под давлением Метод ограниченного телесного угла с использованием счетчика фотонов с малым телесным углом | Источники излучения спонтанно делящихся радионуклидов Растворы радионуклидов, испытывающих электронный захват Источники специального назначения | $5 \cdot 10^4 \div 1 \cdot 10^6$ $1 \cdot 10^4 \div 1 \cdot 10^8$ $1 \cdot 10^2 \div 1 \cdot 10^8$ | $0,1 \div 0,2$ $0,05 \div 0,2$ $0,05 \div 0,2$ | $2,0 \div 4,0$ $1,1 \div 2,2$ $1,1 \div 2,2$ |

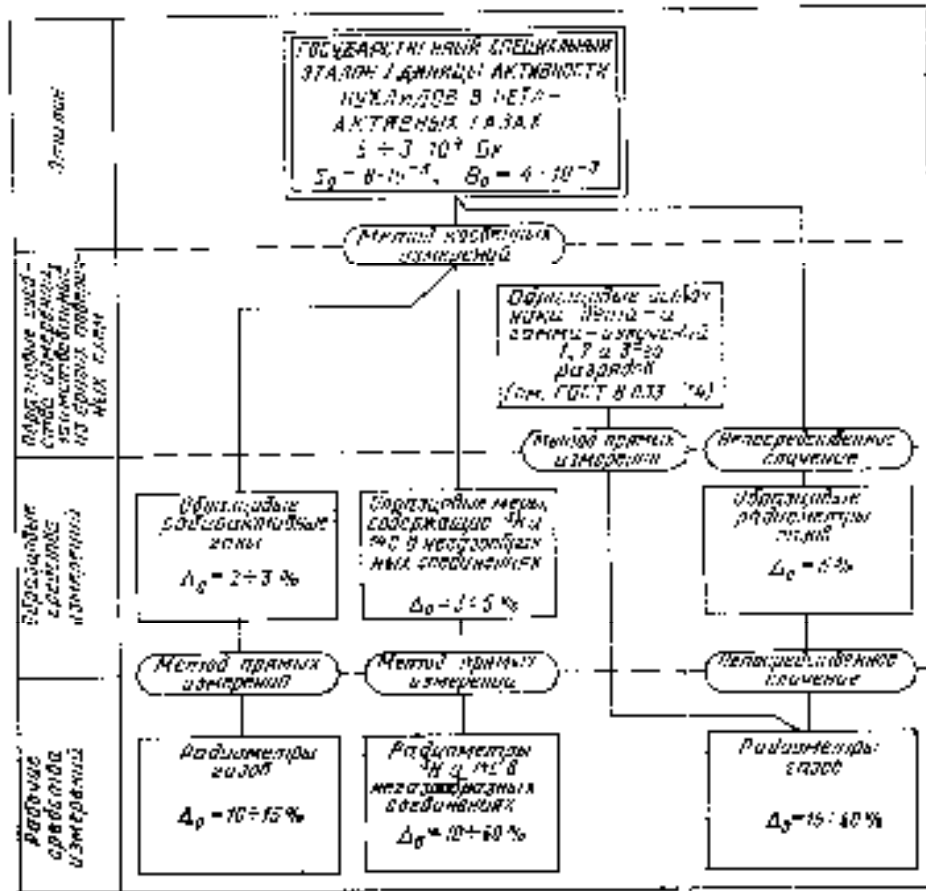
Как следует из таблицы, единица активности радионуклидов воспроизводится государственным первичным эталоном в диапазоне активностей от $5 \cdot 10^2$ до $5 \cdot 10^{12}$ Бк. Случайная погрешность воспроизведения единицы, оцениваемая по среднеквадратическому отклонению (СКО), находится в диапазоне 0,01 - 2%, граница неисключенной систематической погрешности (НСП) 0,1 - 4,0% в зависимости от типа распада и активности нуклида.

Государственный первичный эталон воспроизводит и передает единицу активности радионуклидов, находящихся в растворе или твердом источнике. Как отмечалось выше, радиоактивные элементы могут быть и в других физических состояниях, например в газовой фазе или в виде аэрозолей. Для воспроизведения единицы активности радионуклидов в таких состояниях созданы государственные специальные эталоны.

Государственный специальный эталон единицы активности нуклидов в газах предназначен для воспроизведения объемной активности низкоэнергетических β -активных газов (^3H , ^{14}C , ^{85}Kr и др.). Диапазон воспроизведения объемной активности составляет $5 \cdot 10^3$ - $5 \cdot 10^9$ Бк/м³. СКО результата измерения не превышает 0,8%, НСП=0,4%. В эталоне применен новый тип пропорциональных детекторов внутреннего наполнения — счетчики с подвижным изолятором, в которых можно учитывать концевой эффект, не прибегая к использованию счетчиков разной длины. Сличение эталона с аналогичными национальными

эталоны Франции, Германии и США Показало, что рассогласование результатов измерений не превышает 0,1—0,4%.

**ОБЩЕСОЮЗНАЯ ПОВЕРОЧНАЯ СХЕМА ДЛЯ СРЕДСТВ ИЗМЕРЕНИЙ
АКТИВНОСТИ НУКЛИДОВ В БЕТА-АКТИВНЫХ ГАЗАХ**



Государственный специальный эталон единицы объемной активности радиоактивных аэрозолей предназначен для воспроизведения и передачи объемной активности как искусственных, так и естественных аэрозолей. В состав эталона входят генераторы искусственных и естественных радиоактивных аэрозолей, генератор парообразного ^{131}I , спектрометрическая установка для измерения активности аэрозольных проб по α - β - и γ -излучению. Работа генераторов искусственных аэрозолей основана на методе барботажного чистого воздуха через радиоактивный раствор соли соответствующего радионуклида. При прокачке воздуха на поверхности раствора образуются пузырьки. Разрушаясь под действием поверхностного натяжения, пленки пузырьков распадаются на мелкие капли, которые осушаются при температуре около 150°C , превращаясь в твердые кристаллики — искусственные радиоактивные аэрозоли. Концентрацию аэрозолей можно варьировать путем изменения скорости прокачки, активности раствора или разбавлением чистым воздухом. СКО воспроизводимости

заданного значения объемной активности аэрозолей не превышает 5% в диапазоне $7 \cdot 10^{-2}$ – $4 \cdot 10^3$ Бк/м³.

Естественные радиоактивные аэрозоли создаются генераторами дочерних продуктов распада радона, торона и актинона. Каждый генератор представляет собой замкнутый объем, в который помещен один из упомянутых источников. В генераторах выдерживается условие обеспечения радиоактивного равновесия, СКО воспроизведения объемной активности естественных аэрозолей для дочерних продуктов распада радона не превышает 5% в диапазоне объемных активностей $2 \cdot 10^2$ – $4 \cdot 10^5$ Бк/м³.

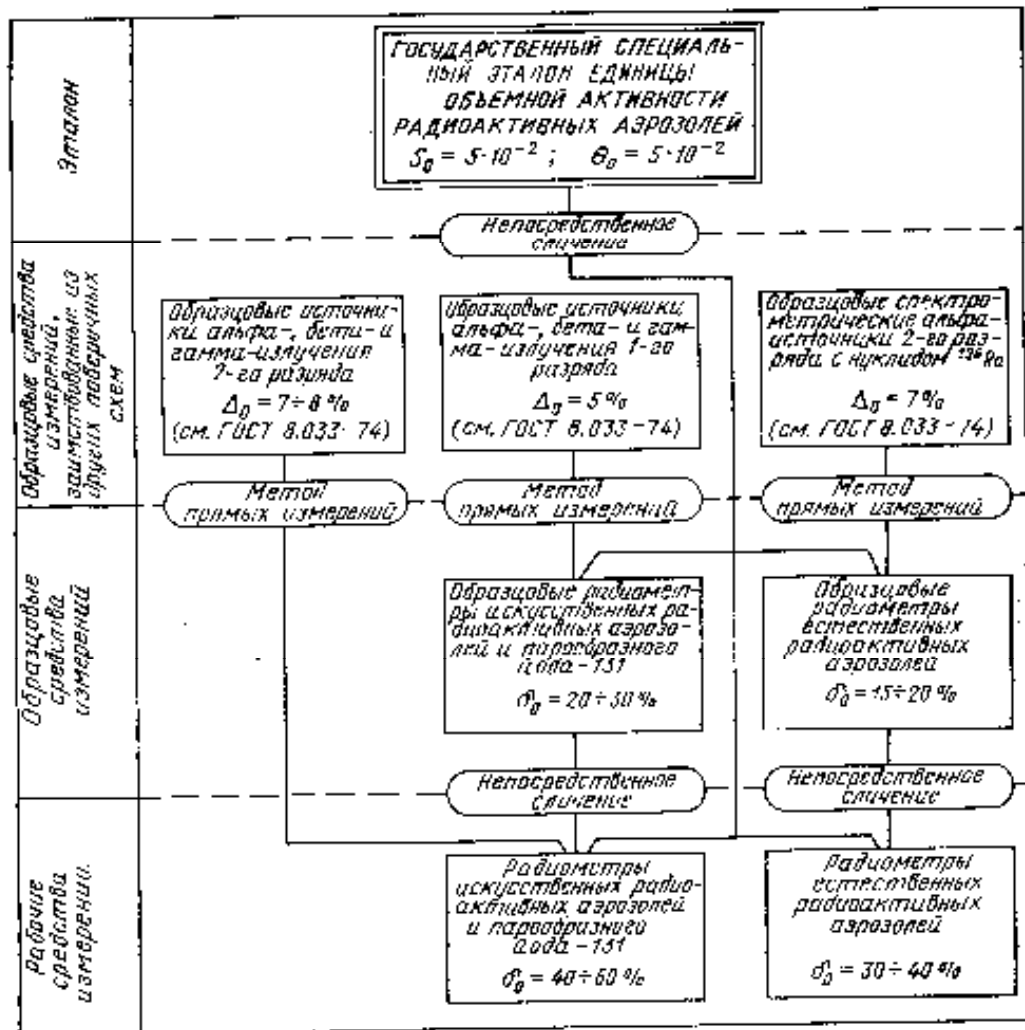
Принцип работы генератора парообразного ¹³¹I основан на методе возгонки раствора KI путем окисления бихроматом калия. Воспроизводимый генератором диапазон объемных активностей составляет 70 – $4 \cdot 10^6$ Бк/м³ при СКО не более 5%.

Активность аэрозольных проб, отобранных на специальные фильтры, измеряется как спектрометрическим, так и счетным методами.

НСП измерения активности пробы в основном определяется погрешностью используемого в эталоне образцового источника и не превышает 5%, СКО результата измерений — не более 5% и обусловлено нестабильностью примененных в эталоне генераторов. Состав, назначение эталона и порядок передачи единицы объемной активности регламентированы ГОСТ 8.033—96.

ГОСТ 8.090—79

**Общесоюзная поверочная схема для средств измерений
объемной активности радиоактивных аэрозолей**



В качестве *вторичных эталонов* единицы активности нуклидов могут применяться источники на твердой подложке, радиоактивные растворы в герметичных ампулах и радиометрические установки. Источники излучений и растворы радионуклидов аттестуются в качестве вторичных эталонов непосредственно на государственном первичном эталоне методом прямого измерения. В том случае, когда в качестве вторичных эталонов применяются радиометрические установки, их аттестация производится путем непосредственного сличения с государственным первичным эталоном с помощью специально изготовленных источников или растворов, играющих роль эталонов сравнения. Вторичные эталоны (источники и установки) применяются в метрологических институтах, например вторичный эталон единицы активности нуклидов в НПО ВНИИФТРИ. Все вторичные эталоны должны регулярно сличаться с государственным первичным эталоном, причем СКО результатов сличений рабочих

эталонов с первичным не должны превышать установленных значений (0,3—3%).

С помощью эталонных источников (рабочих эталонов) аттестуются по 1-му разряду источники α -, β - и γ -излучения и растворы радионуклидов методом компарирования, при этом аттестуемые источники и растворы должны быть изготовлены по той же технологии, что и соответствующие рабочие эталоны, с которыми проводится сравнение. Радиометрические установки аттестуются по 1-му разряду непосредственным сличением с вторичным эталоном (с радиометрической установкой), проводимым с помощью специально изготовленных источников или растворов. Образцовые средства измерения активности нуклидов 1-го разряда применяются в метрологических институтах, специализированных лабораториях Госнадзора и центрах стандартизации и метрологии, а также в головных ведомственных поверочных службах. Поверочная схема для средств измерения активности и удельной активности радионуклидов предусматривает аттестацию источников α - и β -излучения, источников γ -излучения, растворов радионуклидов и радиометрических установок по двум разрядам. В случае проверки прецизионных рабочих радиометров или источников спецназначения допускается поверять их по образцовым средствам измерений более высокого разряда вплоть до рабочего эталона.

Поверочные схемы для средств измерений объемной активности радиоактивных аэрозолей и объемной активности β -активных газов имеют более простую структуру. Так, поверочная схема для средств измерений объемной активности радиоактивных аэрозолей предусматривает трехзвенную систему передачи единицы данной величины: эталон — образцовые средства измерений (без разрядов) — рабочие средства измерений. Допускается также проводить сличения рабочих средств измерений непосредственно с государственным эталоном. По такой же трехзвенной системе осуществляется передача размера единицы активности радиоактивных аэрозолей.

Образцовые источники и растворы, стандартные образцы

Практическая реализация рассмотренных выше поверочных схем невозможна без наличия образцовых источников и растворов, являющихся мерами активности и производных от нее величин. Уровень метрологического обеспечения в радиометрии в первую очередь определяется номенклатурой выпускаемых образцовых источников и растворов. Причем под номенклатурой понимается не только радионуклидный состав источников и растворов, но и диапазоны их активностей, специфика конструктивного исполнения и т. д.

Другой практически важный момент связан с обеспечением измерительного парка образцовыми источниками и растворами в необходимом количестве. Потребность только в образцовых α - и β -источниках составляет десятки тысяч.

Для обеспечения нужд народного хозяйства разработана большая номенклатура образцовых источников и радиоактивных растворов с разными радионуклидами и в широком диапазоне активностей. Серийно выпускаются около 70 различ-

ных **образцовых радиоактивных растворов** (ОРР) на основе около 40 радионуклидов. Образцовыми растворами радиоактивных нуклидов называют аттестованные надлежащим образом радиоактивные растворы известного химического состава, содержащие радиоактивные нуклиды, активность которых определена с точностью, указанной в соответствующей поверочной схеме.

ОРР представляют собой растворы известного химического состава, содержащие определенные радионуклиды и расфасованные герметично в стандартные стеклянные ампулы. Погрешность определения удельной активности составляет для ОРР 1-го разряда 2—3%, для ОРР 2-го разряда — 5% при доверительной вероятности 0,99. ОРР в первую очередь предназначены для градуировки и проверки радиометров жидкостей. Кроме того, они используются для изготовления мер активности — источников специального назначения.

Эти растворы являются наиболее универсальным средством передачи размера единицы активности нуклидов от первичного эталона рабочим мерам и измерительной аппаратуре. По сравнению с образцовыми источниками излучений, изготавливаемыми из весьма ограниченного числа радионуклидов, образцовые растворы могут быть изготовлены из значительно более широкого класса радионуклидов. Кроме того, из образцового раствора могут быть приготовлены радиоактивные источники с заданными характеристиками, наиболее удобными для проведения конкретной работы.

Ряд крупных зарубежных метрологических лабораторий планомерно выпускает образцовые растворы радиоактивных нуклидов. В Российской Федерации выпуск и поставку радиоактивных растворов осуществляет объединение «Изотоп»; номенклатура поставляемых растворов приводится в соответствующих каталогах. Радиоактивный раствор, предназначенный для аттестации в качестве образцового, должен быть изготовлен в соответствии со специальными техническими условиями, варьирующимися в зависимости от вида нуклида. Ниже приведены основные общие технические требования:

1. Схема распада радионуклида, содержащегося в растворе, должна быть изучена достаточно хорошо для точного измерения его активности.
2. Химические свойства раствора должны оставаться неизменными в течение гарантийного срока действия свидетельства об аттестации, т. е. два-три года, а активность нуклида в растворе должна уменьшаться только вследствие радиоактивного

распада и в строгом соответствии с периодом полураспада нуклида.

3. Активность нуклидов в растворах должна быть в пределах от 10 до 10^8 расп./сек·г в зависимости от вида нуклида и разряда образцового раствора.

4. Активности нуклидов-примесей должны быть известны, и они не должны превышать 0,5% активности основного нуклида в течение гарантийного срока.

5. Растворы должны быть заключены в запаянные ампулы из химически устойчивого стекла объемом 1; 5 и 10 мл. В случаях, когда стекло может абсорбировать данный нуклид, можно использовать ампулы из полиэтилена.

6. Ампулы с растворами должны иметь маркировку с обозначением нуклида, химического соединения, удельной активности нуклида, номера партии и номера ампулы.

7. Поверхности ампул не должны иметь радиоактивных загрязнений.

8. Растворы должны сохранять свои характеристики при температурах от 5 до 40° С.

9. Содержание соли в растворе должно быть оптимальным с точки зрения обеспечения как химической стабильности раствора, так и возможности измерения активности нуклида с необходимой точностью.

Активность нуклида в растворе гарантируется на момент вскрытия ампулы, так как хранение раствора после вскрытия ампулы влечет за собой изменение удельной активности нуклида вследствие испарения растворителя, изотопного обмена и т. п. Таким образом, образцовый раствор является мерой одноразового использования, притом немедленно после вскрытия ампулы.

Удельная активность радионуклидов в растворах, предназначенных для аттестации в качестве рабочих эталонов единицы активности, должна быть, как правило, в пределах оптимального для измерения на эталонных установках диапазона, т. е. от 10^4 до 10^8 расп./(с·г). Более низкую удельную активность радионуклидов в образцовых растворах можно получить соответствующим точным разбавлением эталонных растворов.

Образцовые источники α - и β -излучения. Образцовые источники α - и β -излучения (часто называемые сокращенно образцовыми α - и β -источниками) являются образцовыми мерами активности соответствующих нуклидов и служат для градуировки и поверки α - и β -радиометров, для поверки образцовых радиометрических установок и рабочих α - и β -источников. Таким образом, потребность в образцовых α - и β -источниках довольно велика, и число этих источников, применяемых в стране, исчисляется десятками тысяч. Помимо основного требования, предъявляемого ко всем образцовым мерам, — долговечности и стабильности — образцовые α - и β -источники должны удовлетворять также требованию максимальной безопасности в обращении, исключающей возможность попадания радиоактивного вещества в организм лиц, работающих с ними. Первое требование исключает возможность использования источников на подложках из тонких пленок, хотя для таких источников активность нуклида можно измерить с наивысшей точностью, и делает необходимым применение толстых металлических подложек. Второе требование обуславливает необходимость прочного скрепления радиоактивного вещества (активного слоя) с металлической подложкой и даже, по возможности, покрытия активного слоя тонкой защитной пленкой.

Для градуировки альфа-радиометров выпускаются **образцовые α -источники** с нуклидами ^{239}Pu , ^{238}U и ^{234}U . Они представляют собой подложку из нержавеющей стали с углублением, в котором зафиксирован радиоактивный препарат с соответствующим нуклидом. Радиоактивный слой источников защищен тонкой

оксидной металлической пленкой. Выпускаемые α -источники имеют различные размеры. Так, площадь активной поверхности α -источников составляет 1; 4; 10; 40; 100; 160 см^2 . Размеры подложек приведены в табл. 2..

Таблица 2.1

Типоразмеры образцовых источников альфа- и бета-излучения

| Площадь активной поверхности, см^2 | Диаметр, мм | | Площадь активной поверхности, см^2 | Размеры, мм | |
|---|---------------------|----------------------|---|---------------------|----------------------|
| | подложки | активной поверхности | | подложки | активной поверхности |
| 1 | 35 _{-0,4} | 12 _{-0,4} | 160 | Длина | |
| 4 | 52 _{-0,4} | 22 _{-0,4} | | 185 _{-1,5} | 155 _{-1,5} |
| 10 | 66 _{-0,5} | 36 _{-0,5} | | Ширина | |
| 40 | 101 _{-0,6} | 71 _{-0,6} | | 135 ₋₁ | 105 ₋₁ |
| 100 | 143 ₋₁ | 113 ₋₁ | | | |

Активный слой образцовых α - и β -источников окружен неактивным полем, благодаря чему источник можно брать, не прикасаясь к активному слою.

Все источники и их активные поверхности имеют круглую форму, за исключением источников с площадью активной поверхности 160 см^2 , имеющих прямоугольную форму. В зависимости от размеров номинальные значения активности источников составляют от 4 до $4 \cdot 10^6$ Бк для источников ^{239}Pu , от 4 до 600 Бк для источников ^{238}U , от 4 до $1 \cdot 10^3$ Бк для источников ^{234}U . Погрешность аттестации α -источников по активности составляет 5; 7; 10% при доверительной вероятности 0,99 для 1, 2 и 3-го разрядов соответственно. В процессе аттестации также устанавливается значение внешнего излучения в телесный угол 2π ср. Наличие источников с разной площадью рабочей поверхности, разной активностью и аттестованных с разной погрешностью позволяет выбрать необходимый тип источника, подходящий для градуировки определённого альфа-радиометра с учетом размеров его входного окна и конкретно решаемой задачи.

Образцовые α -источники из ^{239}Pu изготавливают так называемым капельным (точнее «микрокапельным») методом. Его достоинством является возможность нанести на подложку заданное количество радиоактивного нуклида в растворе и в химическом соединении, наиболее удобном для обеспечения прочной связи осадка с подложкой. На предварительно очищенную полированную подложку из нержавеющей стали марки X18H9T или X18H10T с помощью микропипетки наносят определенное количество нитрата плутония в водном или спиртовом растворе. После испарения растворителя и специальной температурой обработки получают тонкую пленку радиоактивного вещества, прочно скрепленную с подложкой; о прочности полученного активного слоя свидетельствует то, что при взятии с усилием $0,5 \text{ кг/см}^2$ мазка активность нуклида в активном слое уменьшается не более чем на 0,01%. Толщина активного слоя образцовых α -источников из ^{239}Pu составляет 250 мкг/см^2 .

Образцовые α -источники из ^{234}U и из естественного урана изготавливают соответственно капельным методом и методом электролиза. В первом случае на подложке образуется тонкий слой уранилнитрата, во втором — слой гидратированной окиси урана. Активный слой покрывают слоем лака ОНИЛХ-3 толщиной около 10 мкг/см^2 . Толщина активного слоя вместе с покрытием не превышает 200 мкг/см^2

Образцовые источники β -излучения изготавливаются на основе ^{90}Sr - ^{90}Y . Подложка источников сделана из алюминия. Активная часть источников покрыта тонкой алюминиевой фольгой. Источники имеют типоразмеры, аналогичные типоразмерам α -источников. Активность источника в зависимости от типа составляет от единиц Бк до $2 \cdot 10^7$ Бк.

Образцовые β -источники из $^{90}\text{Sr}+^{90}\text{Y}$ изготавливают микрокапельным методом, нанося активный раствор нитрата стронция на фильтровальную бумагу толщиной $7 \pm 1 \text{ мг/см}^2$, предварительно наклеенную на алюминиевую подложку. После высушивания источник заклеивают алюминиевой фольгой толщиной $50 \text{ мкм} \pm 15\%$.

Источники из $^{90}\text{Sr}+^{90}\text{Y}$, предназначенные для аттестации в качестве рабочих эталонов единицы активности этих нуклидов, изготовлены во ВНИИМ путем нанесения на подложку с помощью микропипетки определенных и точно измеренных (взвешиванием) количеств раствора нитрата стронция, удельная активность нуклида в котором была определена с наивысшей возможной точностью с помощью эталонной установки УЭА-1 (методом 4 π -счета). Активность $^{90}\text{Sr}+^{90}\text{Y}$ в изготовленных источниках была, таким образом, определена по массе раствора, нанесенного на подложку, и по удельной активности нуклида в этом растворе. Внешнее излучение изготовленных источников измерено с помощью эталонной установки УЭА-2. Образцовые α - и β -источники хранят в специальных пеналах из пластика.

Основными нуклидами, из которых изготавливают образцовые α - и β -источники, как уже отмечалось, являются соответственно ^{239}Pu и $^{90}\text{Sr} + ^{90}\text{Y}$. По этим источникам осуществляют основную градуировку шкал радиометров. Для определения зависимости показаний радиометров от энергии регистрируемого излучения изготавливают источники из других нуклидов: ^{234}U и естественного урана (α -источники) и ^{60}Co и ^{204}Tl (β -источники), но с неполным набором площадей активной поверхности. Номенклатура эталонных и образцовых 1-го разряда α - и β -источников приведена в табл. 2.2.

Таблица 2.2.

Номенклатура эталонных и образцовых 1-го разряда α - и β -источников

| Площадь ок- твенного слоя, см ² | Активность нуклида, распад/сек | | |
|--|--|---------|----------------------------|
| | наборчик-204 | | естественное уранил-234 |
| 1 | 20; 200; 2·10 ³ ; 2·10 ⁴ | 2 | 2; 20 |
| 4 | 20; 200; 2·10 ³ ; 2·10 ⁴ | — | — |
| 10 | 20; 200; 2·10 ³ ; 2·10 ⁴ | 20 | 2; 20 |
| 40 | 20; 200; 2·10 ³ ; 2·10 ⁴ | — | — |
| 100 | 20; 200; 2·10 ³ ; 2·10 ⁴ ; 2·10 ⁵ | — | 200 |
| 160 | 20; 200; 2·10 ³ ; 2·10 ⁴ ; 2·10 ⁵ | 20; 200 | — |

| Площадь ок- твенного слоя, см ² | Активность нуклида, распад/сек | |
|--|--|--|
| | Стронций-90 + иттрий-90 | |
| 1 | 200; 2·10 ³ ; 2·10 ⁴ | |
| 4 | 200; 2·10 ³ ; 2·10 ⁴ ; 2·10 ⁵ | |
| 10 | 200; 2·10 ³ ; 2·10 ⁴ ; 2·10 ⁵ | |
| 40 | 200; 2·10 ³ ; 2·10 ⁴ ; 2·10 ⁵ | |
| 100 | 200; 2·10 ³ ; 2·10 ⁴ ; 2·10 ⁵ ; 2·10 ⁶ ; 2·10 ⁷ | |
| 160 | 200; 2·10 ³ ; 2·10 ⁴ ; 2·10 ⁵ ; 2·10 ⁶ ; 2·10 ⁷ | |

| Площадь ок- твенного слоя, см ² | Активность нуклида, распад/сек | |
|--|--|--|
| | Таллий-204 | Кобальт-60 |
| 1 | 200; 2·10 ³ ; 2·10 ⁴ ; 2·10 ⁵ | 200; 2·10 ³ ; 2·10 ⁴ |
| 10 | 200; 2·10 ³ ; 2·10 ⁴ ; 2·10 ⁵ | 200; 2·10 ³ ; 2·10 ⁴ ; 2·10 ⁵ |

Значения активности нуклидов в образцовых α - и β -источниках 2-го разряда, основным назначением которых является градуировка и поверка шкал радиометров, разделены значительно меньшими интервалами: на каждый порядок величины активности нуклида в образцовых источниках 2-го разряда приходится пять значений в соответствии с рядом чисел 1,25; 2,0; 3,15; 5,0; 8,0. Образцовые источники 2-го разряда выпускают в виде наборов и отдельных источников.

Образцовые источники γ -излучения. Образцовые источники γ -излучения, называемые сокращенно образцовыми γ -источниками, являются образцовыми мерами двух величин: мощности экспозиционной дозы излучения (в стандартных условиях коллимирования) и активности нуклида (или массы радия в случае радиевых источников). Основным назначением этих источников является градуировка дозиметрических и радиометрических приборов, образцовых радиометрических установок и рабочих γ -источников. Здесь будем рассматривать образцовые γ -источники только как образцовые меры активности нуклидов или массы радия.

В образцовых γ -источниках радиоактивное вещество заключено в герметичную металлическую или стеклянную оболочку. Эти источники изготовляют из следующих нуклидов: ⁶⁰Co, ¹³⁷Cs и ²²⁶Ra (в равновесии с продуктами распада до RaC'' включительно). Активная часть образцового γ -источника из ⁶⁰Co представляет собой цилиндр из металлического кобальта, облученный в реакторе до получения нужной активности ⁶⁰Co. Активная часть заключена в оболочку из нержавеющей стали с крышкой, заваренной аргоно-дуговой сваркой.

Появление новых радиометрических задач приводит к необходимости расширять номенклатуру образцовых источников и создавать специальные СО.

Образцовые спектрометрические источники. Образцовые спектрометрические источники предназначены для градуировки спектрометров ядерных излучений. Эти спектрометры необходимо градуировать по энергии излучения и по эффективности, поэтому образцовые спектрометрические источники являются образцовыми мерами двух величин: энергии излучения и активности нуклида. Здесь источники рассматриваются только как меры второй из указанных величин.

Образцовые спектрометрические источники подразделяются по виду излучения на образцовые спектрометрические источники α -излучения (ОСАИ), образцовые спектрометрические источники конверсионных электронов (ОСИКЭ) и образцовые спектрометрические источники γ -излучения (ОСГИ).

Образцовый спектрометрический α -источник характеризуется тремя величинами: собственной полушириной линий α -спектра, энергией α -частиц и активностью нуклида. Собственная полуширина спектральной линии, т. е. ширина линии на половине ее высоты, обусловлена потерями энергии α -частицы при прохождении ее через активный слой и защитную пленку. По этой же причине энергии α -частиц, испускаемых источником, отличаются от табличного значения для данного радионуклида. Таким образом, собственная полуширина линий α -спектра и энергия испускаемых источником α -частиц зависят от толщины активного слоя и от толщины и материала защитной пленки. Образцовые спектрометрические α -источники делятся по собственной полуширине на три категории: I — до 10 кэВ, II — от 10 до 20 кэВ и III — от 20 до 50 кэВ; по номинальным значениям активности нуклидов — на пять типов; $3 \cdot 10^2$, $3 \cdot 10^3$, $3 \cdot 10^3$, $3 \cdot 10^4$ и $3 \cdot 10^5$ расп./сек.

Изготавливают образцовые спектрометрические α -источники из следующих нуклидов (или их смеси): ^{234}U , ^{239}Pu , ^{238}Pu , ^{241}Am , ^{242}Cm , ^{244}Cm , ^{210}Po , ^{226}Ra . Подложки изготавливают из нержавеющей стали марок X18H9T и X18H10T. Активный слой наносят по термооксидной технологии. Толщина активного слоя ОСАИ I категории не должна превышать 5—10 $\text{мкг}/\text{см}^2$. Источники из эманлирующих нуклидов имеют герметизирующее покрытие из пленки толщиной 0,10—0,15 мкм . Диаметр активной поверхности 12 мм .

Измерение активности нуклидов в ОСАИ осуществляется теми же методами, которые применяют для градуировки радиометрических образцовых α -источников.

Разработаны и серийно выпускаются комплекты **образцовых спектрометрических γ -источников** (ОСГИ). Комплект содержит источники на основе нуклидов ^{54}Mn , ^{57}Co , ^{60}Co , ^{88}Y , ^{113}Sn , ^{137}Cs , ^{139}Ce , ^{241}Am , ^{109}Cd , ^{133}Ba , ^{152}Eu , ^{228}Th . Каждый источник является мерой активности соответствующего нуклида. Погрешность определения активности нуклида в источнике не превышает 3% при до-

верительной вероятности 0,99. Источники выполнены в виде кольца с размещёнными в середине двумя органическими пленками толщиной 6 ± 1 мг/см², между которыми в центре помещается радиоактивное вещество в виде пятна. Основными характеристиками образцового спектрометрического γ -источника являются: активность нуклида и квантовый выход (отношение числа γ -квантов данной энергии, испускаемых источником в телесном угле 4π в 1 сек, к активности нуклида в источнике). Активность нуклида в ОСГИ измеряют относительным методом, сравнивая их по γ -излучению с рабочими эталонами единицы активности данного нуклида, аттестованными на соответствующих эталонных установках. Список нуклидов, из которых изготавливают ОСГИ и основные характеристики последних приведены в табл. 2.3.

Таблица 2.3

Список нуклидов, из которых комплекта ОСГИ и их основные характеристики

Ядерно-физические характеристики ядерных радионуклидов
 Рекомендуются значения основных осевых ядерно-физических характеристик радионуклидов

| Радио-нуклид | Период полураспада | Энергия гамма-излучения, кэВ | Интенсивность гамма-излучения, % | |
|---------------------------|---|--|--|---|
| | | | относит. | абсолют. |
| ⁵⁴ Mn | 312,1(5)сут | 834,844(18) | - | 59,975(6) |
| ⁶⁷ Co | 271,86(15)сут | 14,415(5) 122,6614(6) 135,4743(10) | 11,2(4) 100 22,37(25) | 9,57(25) 95,7(3) 19,6(2) |
| ⁶⁰ Co | 5,2712(22)лет | 1173,238(6) 1332,502(10) | 95,37(4) 100 | 99,95(4) 99,982(2) |
| ⁶⁴ Cu | 106,483(3)сут | 959,042(8) 983,063(25) | 74,5(4) 100 | 93,9(6) 99,4(2) |
| ⁶⁶ Zn | 652,048(3)сут | 68,034(2) | - | 3,65(11) |
| ⁵⁷ Pb доч. | 115,0667(3)сут | 255,133(16) 391,701(8) | 3,2(4) 100 | 2,90(25) 67,9(4) |
| ²¹⁰ Pb доч. | 3,90(30)·10 ³ сут 10,7(3)лет | 79,631(10) 80,996(6) 276,406(6) 302,858(6) 356,014(6) 383,659(10) | 4,0(4) 54,6(16) 11,3(3) 29,7(6) 100 14,42(25) | 2,5(4) 34,2(25) 7,2(6) 18,5(14) 63(4) 9,1(6) |
| ²¹⁰ Po доч. | 11017(5)сут 30,168(25)лет | 661,662(3) | - | 84,6(4) |
| ²¹⁰ Bi доч. | 57,64(8)сут | 165,658(6) | - | 79,95(18) |

В в скобках указана погрешность для достоверных вероятности 0,95
 в скобках последней значащей цифры значащие величины.

| Радио-нуклид | Период полураспада | Энергия гамма-излучения, кэВ | Интенсивность гамма-излучения, % | |
|--------------------------|---|---|---|--|
| | | | относит. | абсолют. |
| ¹³⁷ Cs | 30,17(3)лет | 121,7824(8) 244,659(2) 344,281(4) 415,115(10) 443,976(10) 778,593(12) 867,388(16) 947,3(4) 964,111(18) 1085,914(25) 1112,123(3) 1212,954(2) 1408,013(3) | 106,7(20) 28,3(5) 100 8,40(14) 11,74(16) 46,8(7) 54,6(6) 15,9(3) 39,2(5) 51,0(7) 5,70(12) 18,4(18) | 28,4(5) 7,51(10) 26,6(6) 2,23(3) 3,12(3) 12,58(14) 4,13(17) 14,62(12) 10,16(10) 13,56(12) 1,41(6) 20,85(16) |
| ¹³² I доч. | 652,7(15)сут 1,935(4)лет | 233,4(3) 239,632(6) 240,982(12) 277,358(20) 300,09(2) 583,194(4) 722,3(20) 727,338(18) 840,564(10) 1620,74(2) 2616,533(25) | - 124,5(25) - - - - - - - - 890 | 0,11(2) 44,9(20) 3,97(25) 2,31(8) 3,4(2) 30,6(8) 0,10(4) 6,67(14) 4,4(4) 1,61(6) 35,06(16) |
| ¹³¹ I доч. | 1,522(22)·10 ³ сут 432,1(5)лет | 26,345(2) 39,537(2) | 6,82(6) 100 | 2,4(2) 35,8(8) |

Диапазон энергий γ -излучения комплекта ОСГИ составляет 59,64-2734 кэВ. С помощью источников из комплекта ОСГИ определяется чувствительность радиометров по γ -излучению, причем эти источники, испуская γ -излучение разной энергии, позволяют измерять также зависимость чувствительности от энергии γ -излучения. Другая сфера использования комплектов ОСГИ — в спектроскопии γ -излучения будет рассмотрена далее.

Стандартные образцы тритиевой воды (СОТВ) предназначены для градуировки образцовых и рабочих β -радиометров жидкости. СОТВ представляют собой радиоактивные растворы тритиевой воды в дистиллированной воде, расфасованные в стандартные флаконы объемом 20 мл. Номинальные значения удельной активности составляют 10^3 ; 10^4 ; 10^5 ; 10^6 Бк/г. Погрешность определения удельной активности СОТВ не превышает 2% при доверительной вероятности 0,99.

Стандартные образцы растворов тритиевой воды в сцинтилляторе (СОРТВ) предназначены для градуировки сцинтилляционных радиометров жидкости. Они представляют собой образцовые радиоактивные растворы тритиевой воды в жидком сцинтилляторе ЖС-8, расфасованные в стандартные флаконы объемом 20 мл. Номинальные значения удельной активности составляют 10^2 ; 10^3 ; 10^4 Бк/г. Погрешность определения удельной активности не более 2% при доверительной вероятности 0,99.

Стандартные образцы растворов радионуклида трития в толуоловом сцинтилляторе с гашением (СОРРТТ) предназначены для градуировки и поверки сцинтилляционных β -радиометров жидкости с учетом эффекта гашения по методу внешнего стандарта. Каждый образец представляет собой образцовый радиоактивный раствор, изготовленный на основе сцинтилляционной жидкости — раствора РРО (4 г/л) и РОРОР (0,1 г/л) в толуоле марки ОЧ. В качестве вещества-метки используется толуол, меченный тритием, в качестве гасящего агента применяется четыреххлористый углерод. Номинальное значение активности составляет 10^4 Бк. Погрешность определения активности не превышает 3% при доверительной вероятности 0,99. СОРРТТ расфасованы в стандартные флаконы. Объем фасовки 10 мл.

Стандартные образцы растворов радионуклида ^{14}C в толуоловом сцинтилляторе с гашением (СОРРУТ) предназначены также для градуировки и поверки жидкостных сцинтилляционных бета-радиометров с учетом эффекта гашения по методу внешнего стандарта. Они представляют собой образцовые радиоактивные растворы, изготовленные на основе сцинтилляционной жидкости — раствора РРО (4 г/л) и РОРОР (0,1 г/л) в толуоле марки ОЧ. В качестве вещества-метки применяется толуол, меченный радионуклидом ^{14}C , в качестве гасящего агента - четыреххлористый углерод. Номинальное значение активности составляет 10^4 Бк. Погрешность определения активности не превышает 3% при доверительной вероятности 0,99. Как и предыдущие стандартные образцы СОРРУТ расфасованы в стандартные флаконы. Объем фасовки — 10 мл,

Стандартные образцы радиоактивных газов (СОРГ) предназначены для градуировки и поверки образцовых и рабочих радио метров газов. СОРГ представляют собой смесь радиоактивных газов: трития (^3H), углекислого газа с ^{14}C , ^{85}Kr , ^{133}Xe с неактивными газами этих же элементов, заключенных в герметичные металлические баллоны под давлением. Номинальные значения объемной активности составляют $1,5 \cdot 10^5$ Бк/($\text{м}^3 \cdot \text{Па}$) для нуклида ^{14}C в углекислом газе, $3,75 \cdot 10^5$ Бк/($\text{м}^3 \cdot \text{Па}$) для ^3H , ^{85}Kr и ^{133}Xe . Погрешность определения активности нуклидов, входящих в СОРГ, не превышает 3% при доверительной вероятности 0,95.

Для метрологической аттестации и поверки аэрозольных и йодных каналов аппаратуры контроля радиационной безопасности на атомных электростанциях разработаны **аэрозольные источники специального назначения (САИ)**. САИ представляют собой аэрозольную пробу с радионуклидами $^{90}\text{Sr} + ^{90}\text{Y}$, отобранную на государственном специальном эталоне единицы объемной активности радиоактивных аэрозолей в номинальном режиме скорости движения фильтрующей ленты и объемного расхода.

Такой источник полностью воспроизводит геометрию измерения аспирированного участка фильтра в реальных условиях. Аттестуемыми характеристиками САИ являются активность аэрозольной пробы (Бк) и соответствующая ей объемная активность аэрозоля (Бк/ м^3) с указанием соответствующего режима отбора аэрозольной пробы. Погрешность аттестации таких источников не превышает 15%.

Наиболее актуальным остается вопрос обеспечения средствами градуировки радиометров, измеряющих активность объектов окружающей среды, к которым относятся почва, вода, растительность, продукты питания и т. д. В качестве **стандартных образцов радиоактивной загрязненности (СОРЗ)** этих объектов в принципе можно использовать образцовые источники, изготовленные на основе соответствующих ОРР и непосредственно материала объекта внешней среды, например почвы, растительности, зерна и т. д. Однако исследования СОРЗ, изготовленных по такой технологии, показали, что при этом нельзя обеспечить надежного закрепления радиоактивного вещества и его равномерного распределения в СО. Кроме того, источники на основе растительных и пищевых продуктов недолговечны, так как подвержены загниванию, образованию плесени и т. д. Поэтому возникает необходимость в разработке таких СОРЗ, в которых вместо природного материала используется имитант соответствующего объекта. Подбор материала для имитанта должен производиться исходя из условия обеспечения радиационного подобия вещества имитанта и пробы. Другими словами, физико-химические свойства имитанта должны быть такими, чтобы процессы взаимодействия излучения данного типа с веществом имитанта были адекватны процессам, происходящим в реальной пробе. Этот общий принцип может быть детализирован:

- эффективный атомный номер $Z_{эф}$ вещества имитанта должен быть таким же, как у естественного объекта;

- массовые коэффициенты ослабления γ -излучения имитанта и пробы должны совпадать;
- энергетические спектры (β - или γ -излучения, испускаемого СОРЗ и пробой, должны быть одинаковы.

Добавив к этим условиям требования по равномерности распределения радиоактивной метки в имитанте и уровню собственного радиоактивного фона вещества имитанта, мы получим общие требования, которым должны удовлетворять СОРЗ.

На практике измеряемые пробы, даже если они являются характеристикой объекта внешней среды одного типа (например, почвы); могут иметь различный физико-химический и радионуклидный состав. Создание СОРЗ для каждой конкретной пробы, полностью удовлетворяющего вышеперечисленным требованиям, практически невозможно. Поэтому желательно подбирать такой имитант, который выполняет роль единого СОРЗ для одного или нескольких типовых объектов окружающей среды. Именно такой подход был использован при создании единого имитанта почв, имеющих $Z_{эф}$ от 11 до 14. Аналогичные выводы сделаны и относительно продуктов питания растительного происхождения: риса, гречневой крупы, пшеницы, муки и т. д. ($Z_{эф} \approx 7$). Полученные выводы были использованы при разработке СОРЗ почвы и пищевых продуктов, предназначенных для градуировки радиометров. В настоящее время СОРЗ почвы изготавливаются на основе смеси эпоксидного компаунда с различными наполнителями (оксиды металлов, пластмассы и т. д.), куда вводится при тщательном перемешивании дозированное количество раствора радионуклидов. По аналогичной технологии и с аналогичными радиоактивными метками изготавливаются СОРЗ пищевых продуктов. СОРЗ выпускаются в виде гранул размером до двух миллиметров. Это позволяет отбирать нужное по массе или объему количество СО и обеспечивать градуировку приборов с различными по форме и объему кюветами.

Аттестуемой характеристикой СОРЗ является удельная активность. Диапазон удельной активности составляет $1 \cdot 10^3$ — $1 \cdot 10^5$ Бк/кг. Погрешность аттестации СО не превышает 5% при доверительной вероятности 0,99. Неравномерность распределения радиоактивной метки по объему образца находится в пределах 2—3%.

Вышеперечисленные СО используются как при испытаниях радиометров, так и при проведении их поверки.

Поскольку использование СО при испытаниях радиометров регламентируется соответствующей нормативной документацией, а при поверочных работах — методами поверки, изложенными в НТД на конкретные средства измерений, нет необходимости в детальном описании операций с использованием СО. Вместе с тем, как показала практика, для определенного круга задач, решаемых с привлечением радиометров разных типов, необходимо иметь четкие рекомендации в части, касающейся, правильности выбора методики измерения и исключения возможных промахов.

Глава 3. МЕТОДЫ АБСОЛЮТНОГО ИЗМЕРЕНИЯ АКТИВНОСТИ НУКЛИДОВ

Радиоактивные источники излучений и различные радиоактивные образцы, применяемые в ряде областей науки, промышленности, медицины и др. и подлежащие градуировке и поверке по активности нуклидов, весьма многообразны по роду нуклидов, из которых они изготовлены, по значениям активности последних, по своим геометрическим формам и размерам, по физическому состоянию, структуре и т. д.

Все применяемые на практике радиоактивные источники и образцы должны быть в конечном счете «привязаны» в соответствии с поверочной схемой к первичному эталону единицы активности нуклидов. Иными словами, первичный эталон единицы активности нуклидов должен обеспечить возможность воспроизведения этой единицы для всех радионуклидов во всем используемом диапазоне значений активности, а также передачу размера единицы всему комплексу применяемых на практике радиоактивных источников и образцов.

Из сказанного становится очевидной невозможность использования какого-либо одного эталона для воспроизведения данной единицы. Для решения задачи приходится применять столь же разнообразные методы измерений, сколь различны характер излучения, тип радиоактивного распада нуклидов в источниках и активность этих нуклидов. А, следовательно, необходима эталонная аппаратура, основанная на использовании ряда методов абсолютного измерения этой величины.

Здесь и ниже *под методом абсолютного измерения подразумевается метод, дающий возможность измерять значение данной величины в единицах определенной системы, не прибегая при этом к какому-либо сравнению с образцом той же природы, принятым за эталон.* В данном случае *под абсолютным методом измерения активности нуклида подразумевается метод, который позволяет определить значение этой величины путем измерения других, связанных с нею величин, не используя при этом какой-либо иной радиоактивный образец с активностью нуклида, известной на основании измерения ее другим независимым методом.*

При относительном методе измерения активности нуклидов сравнивают (с помощью подходящей *компараторной установки*) данный радиоактивный образец с эталоном и активность нуклида в образце определяют по активности нуклида, в эталоне и по соотношению эффектов, возникающих под действием излучения сравниваемых образцов в компараторной установке.

В данной главе последовательно описаны методы абсолютного, а в следующей главе – относительного измерения активности нуклидов.

В настоящее время известно большое число разнообразных методов абсолютного измерения активности нуклидов.

Имеющиеся методы неравноценны как по диапазону измеряемых значений активности нуклидов, так и по точности результата измерений, которую они мо-

гут обеспечить. Очевидно, что *для использования в эталонных установках могут быть отобраны лишь такие методы, которые обеспечивают получение наивысшей возможной точности измерений.* С этой точки зрения ниже рассматриваются существующие методы абсолютного измерения активности нуклидов; детальное описание методики измерений и процедуры обработки результатов здесь не приводится, так как эти вопросы будут освещены в дальнейшем, при описании соответствующих эталонных установок.

3.1. Метод абсолютного счёта заряженных частиц и фотонов.

Метод абсолютного счёта заряженных частиц и фотонов основан на знании числа частиц или фотонов, испускаемых при каждом акте распада измеряемого нуклида, и измерении с помощью того или иного счетчика числа частиц или фотонов, испускаемых данным источником в единицу времени в полном телесном угле 4π . Существует несколько модификаций этого метода, рассматриваемых ниже.

3.1.1. Метод определенного телесного угла.

Метод счёта заряженных частиц и фотонов в определенном телесном угле является одним из наиболее ранних методов измерения активности нуклидов, получившим развитие в большом числе работ.

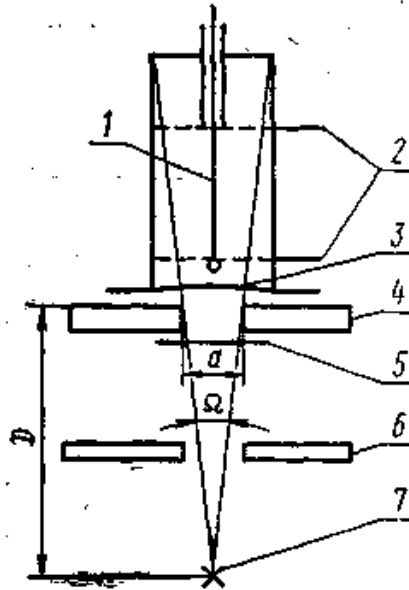


Рис. 3.1. Схема β -счетчика с определенным телесным углом:

1 — нить счетчика; 2 — границы чувствительного объема; 3 — окно счетчика; 4 — экран с круглым отверстием; 5 — поглотитель; 6 — диафрагма; 7 — источник

Схема измерения представлена на рис. 3.1. Точечный источник радионуклида активностью A расположен на некотором расстоянии от счетчика; обычно это торцовый счетчик с тонким «окном», но могут применяться счетчики и других конструкций. Телесный угол, внутри которого частицы, испускаемые источником, попадают в счетчик, выделяется диафрагмой с прямоугольным или круг-

лым отверстием (апертурой). Толщина диафрагмы должна превышать длину максимального пробега частиц в материале диафрагмы.

Рассмотрим подробно *зависимость между абсолютной и регистрируемой радиоактивностью*, а также факторы, связанные с характеристиками аппаратуры.

Учет фона. Фоном называют показания прибора в отсутствие исследуемого источника излучения. Фон обусловлен космическим излучением, радиоактивностью конструкционных материалов, возникающими в приборе ложными импульсами, а также наличием в рабочем помещении других радиоактивных образцов, присутствием радиоактивных веществ в воздухе и загрязненностью деталей измерительного устройства. От уровня фона зависит чувствительность радиометрической аппаратуры, т.е. минимальная радиоактивность образца, которая может быть надежно зафиксирована прибором. Поэтому стараются максимально снизить фон, добиваясь, чтобы в помещениях, где проводятся измерения радиоактивности, отсутствовали радиоактивные загрязнения (в частности, в воздухе).

Применение защитного кожуха ("домика")» в который помещают счетчик, дает возможность полностью исключить влияние внешних источников α - и β -излучения и заметно уменьшить фон, создаваемый внешним γ -излучением и космическим излучением. Защитные домики обычно делают из свинца, в некоторых случаях используют сталь, собственная радиоактивность которой ниже активности свинца.

Уровень фона зависит от конструкции детектора и срока его службы и увеличивается в процессе эксплуатации детектора. В паспорте, прилагаемом к детектору, обычно указывают предельное значение фона. Если фон детектора (в отсутствие внешних источников излучения и радиоактивного загрязнения) значительно превышает это значение, детектор считают непригодным для работы.

Измерения фона следует проводить в тех же условиях, что и измерения препарата, т.е. в домик необходимо помещать держатель для образцов с подложкой, на которую в дальнейшем будет нанесен радиоактивный образец (если подложка используется неоднократно); естественно, что при измерениях защитный домик должен быть закрыт.

Обычно скорость счета фона следует распределению Пуассона. Возникновение ложных импульсов в детекторе и колебания уровня космического излучения приводят к нарушениям пуассоновского характера флуктуации фона. Вероятность этих процессов возрастает со временем. Так, было показано, что результаты измерения фона в течение рабочего дня не подчиняются распределению Пуассона, а в пределах каждого из интервалов продолжительностью 1—2 ч оно выполняется. В качестве практического вывода может быть дана рекомендация измерять скорость счета фона каждые 1 – 2 часа.

Трудно дать конкретные указания, каким образом чередовать измерения препаратов с фоном и фона; можно лишь в достаточно общих чертах определить три возможные ситуации.

1. Фон измеряется с подложкой многократного использования. В этом случае, естественно, измерение фона должно предшествовать измерению каждого препарата.
2. Фон измеряется без подложки; скорости счета измеряемых препаратов более чем в 50 раз превышают скорость счета фона. При этих условиях можно проводить измерения по схеме:

$$\Phi_1 - \Pi_1 - \Pi_2 - \dots - \Pi_k - \Phi_2 - \Pi_{k+1} - \dots$$

где Φ - измерение фона, а Π - измерение препарата с фоном. Как уже говорилось, интервал между измерениями фона не должен превышать 1—2 ч.

3. Фон измеряется без подложки; скорости счета препаратов не очень сильно отличаются от скорости счета фона. В таких случаях целесообразно проводить измерения по схеме:

$$\Pi_1 - \Phi_1 - \Pi_2 ; \Pi_3 - \Phi_2 - \Pi_4 \dots$$

и вычитать скорость счета фона, определяющуюся между измерениями двух препаратов, из скоростей счета, полученных при регистрации этих препаратов. Вопрос о выборе оптимальной продолжительности измерений скорости счета препарата с фоном и фона, обеспечивающей заданный уровень погрешности результата при 95%ной доверительной вероятности, рассматривается в соответствующем разделе.

При измерениях активности β -радиоактивных препаратов, испускающих также и γ -излучение, определяют γ -фон. Для учета γ -фона снимают кривую ослабления β -частиц, тогда остаточная активность, не изменяющаяся с дальнейшим увеличением толщины поглотителя, может быть приписана γ -компоненте. В случае γ -излучения низкой энергии этот способ приводит к погрешностям из-за поглощения γ -излучения в алюминии и вследствие изменения вероятности регистрации γ -излучения детектором при введении поглотителей.

Если скорость счета препарата настолько высока, что в результате измерений необходимо вносить поправку на разрешающее время, то фон вычитают после введения соответствующей поправки.

Разрешающее время продлевающегося и непродлевающегося типа. Разрешающим временем τ счетчика или радиотехнической схемы называют минимальный промежуток времени между двумя последовательными импульсами, которые регистрируются раздельно. Разрешающее время принято выражать в долях секунды или минуты; строго говоря, эту величину следует измерять в секундах (или минутах) на импульс. Обусловленные разрешающим временем потери при регистрации импульсов складываются из потерь за счет разрешающего времени отдельных блоков счетной установки. Так, разрешающее время счетчиков Гейгера-Мюллера составляет примерно $2 \cdot 10^{-4}$ с, а сцинтилляционных

счетчиков – $1 \cdot 10^{-6}$ с. Разрешающее время усилительных блоков - от $5 \cdot 10^{-5}$ с до $1 \cdot 10^{-6}$ с для разных типов приборов. Общее разрешающее время установки определяется разрешающим временем того из блоков, для которого τ максимально.

В зависимости от особенностей регистрирующей схемы разрешающее время может быть продлевающимся или непродлевающимся типа. Характерная особенность разрешающего времени **продлевающимся** типа: каждое попадание частицы в счетчик за время τ после очередного отсчета продлевает разрешающее время еще на интервал τ . Обозначим среднее число частиц, попадающих в счетчик в единицу времени, I , а среднее число частиц, измеряемое прибором за единицу времени, $I_{изм}$. Чтобы установка зарегистрировала частицу, попавшую в счетчик в интервал времени от t до $t+dt$, необходимо, чтобы за время от $t-\tau$ до t через счетчик не прошла ни одна частица. Вероятность того, что ни одна частица не попадет в счетчик за время τ (иными словами, вероятность того, что частица, попавшая в счетчик за последующий интервал времени dt , будет зарегистрирована), равна $\omega = \exp(-I\tau)$. Тогда число частиц, измеренное прибором за время dt , $I_{изм}dt$ будет равно произведению $I dt \cdot \omega$, т.е.

$$I_{изм}dt = I \exp(-I\tau) dt \quad (3.1)$$

Следовательно, общее число частиц, измеренное прибором в единицу времени,

$$I_{изм} = I \exp(-I\tau) \quad (3.2)$$

Формулу (12) можно представить также в виде

$$I = I_{изм} \exp(I\tau) \quad (3.3)$$

Определим максимальное значение скорости счета $I_{изм}$ в зависимости от I , для чего возьмем соответствующую производную:

$$\begin{aligned} \frac{dI_{изм}}{dI} &= \exp(-I\tau) + I \exp(-I\tau)(-\tau) = 0; \\ \exp(-I\tau)(1 - I\tau) &= 0 \end{aligned} \quad (3.4)$$

Поскольку вероятность $\omega = \exp(-I\tau)$ отлична от нуля, приравниваем к нулю множитель в скобках: $1 - I\tau = 0$. Отсюда можно найти значение I^* , при котором $I_{изм}$ достигает максимума:

$$I^* = 1/\tau \quad (3.4)$$

Подставляя I^* вместо I в формулу (12), получаем:

$$(I_{изм})_{макс} = I^* \exp(-I^* \tau) = \frac{1}{\tau} \exp\left(-\frac{1}{\tau} \tau\right) = \frac{1}{e\tau} \quad (3.5)$$

и, следовательно,

$$\tau = \frac{1}{e(I_{изм})_{макс}} \quad (3.6)$$

Найденное выражение указывает простой экспериментальный способ определения τ . Следует взять достаточно сильный источник излучения и приближать его к счетчику до тех пор, пока число сосчитываемых в единицу времени импульсов не достигнет наибольшего значения. Дальнейшее приближение источника излучения будет вызывать уменьшение числа сосчитанных импульсов. (Экстремальный характер зависимости измеряемой активности от числа попадающих в счетчик частиц как раз и является признаком разрешающего времени продлевающегося типа): Подставляя значение $(I_{изм})_{макс}$ в формулу (3.6), рассчитывают τ . Конечно, такой метод связан с перегрузкой аппаратуры и потому в некоторых случаях применение его может оказаться нежелательным.

После несложных преобразований формула (3.3) приобретает более удобный для практических расчетов вид [6]. Логарифмируя выражение (3.3) и умножая обе части полученного выражения на $I_{изм}/I$ получаем:

$$\frac{I_{изм}}{I} I \tau = \frac{I_{изм}}{I} \ln \left(\frac{I}{I_{изм}} \right)$$

или (3.7)

$$I_{изм} \tau = \frac{\ln(I/I_{изм})}{I/I_{изм}}$$

Последнее выражение позволяет рассчитать $I/I_{изм}$ как функцию экспериментально измеренной величины $I_{изм} \tau$. Эта зависимость приведена в табл. 3.1 и на рис. 3.1.

Таблица 3.1

Зависимость между поправкой на разрешающее время $I/I_{изм}$ и значением произведения $I_{изм} \tau$ рассчитанная по формуле (3.7)

| $I/I_{изм}$ | $I_{изм} \tau$ | $I/I_{изм}$ | $I_{изм} \tau$ | $I/I_{изм}$ | $I_{изм} \tau$ | $I/I_{изм}$ | $I_{изм} \tau$ | $I/I_{изм}$ | $I_{изм} \tau$ |
|-------------|----------------|-------------|----------------|-------------|----------------|-------------|----------------|-------------|----------------|
| 1,01 | 0,010 | 1,11 | 0,094 | - | - | 2,1 | 0,343 | 3,1 | 0,365 |
| 1,02 | 0,019 | 1,12 | 0,101 | - | - | 2,2 | 0,358 | 3,2 | 0,364 |
| 1,03 | 0,029 | 1,13 | 0,108 | 1,3 | 0,202 | 2,3 | 0,362 | 3,3 | 0,362 |
| 1,04 | 0,038 | 1,14 | 0,115 | 1,4 | 0,240 | 2,4 | 0,365 | 3,4 | 0,360 |
| 1,05 | 0,047 | 1,15 | 0,122 | 1,5 | 0,276 | 2,5 | 0,367 | 3,5 | 0,358 |
| 1,06 | 0,055 | 1,16 | 0,128 | 1,6 | 0,294 | 2,6 | 0,368 | 3,6 | 0,356 |
| 1,07 | 0,063 | 1,17 | 0,134 | 1,7 | 0,312 | 2,7 | 0,368 | 3,7 | 0,354 |
| 1,08 | 0,071 | 1,18 | 0,140 | 1,8 | 0,327 | 2,8 | 0,368 | 3,8 | 0,351 |
| 1,09 | 0,079 | 1,19 | 0,146 | 1,9 | 0,338 | 2,9 | 0,367 | 3,9 | 0,349 |
| 1,10 | 0,087 | 1,20 | 0,152 | 2,0 | 0,347 | 3,0 | 0,366 | 4,0 | 0,347 |

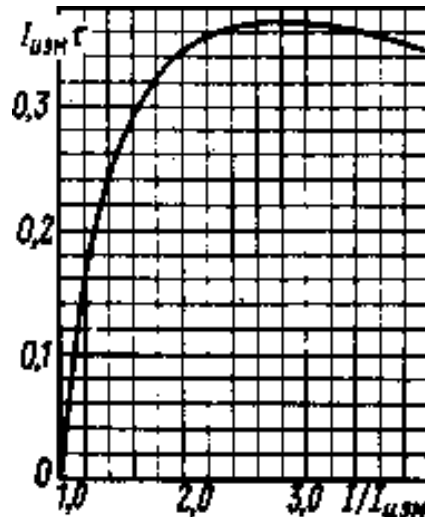


Рис. 3.1. Зависимость между поправкой на разрешающее время $I/I_{изм}$ и значением произведения $I_{изм}\tau$ рассчитанная по формуле (3.7)

Графиком, представленным на рис. 3.1, можно пользоваться для определения полного числа частиц I , попавших в счетчик в единицу времени (скорости счета, исправленной на разрешающее время). Для этого умножают измеренную прибором скорость счета $I_{изм}$ препарата на разрешающее время τ и из графика определяют $I/I_{изм} = f(I_{изм}\tau)$. Для достаточно больших произведений $I_{изм}\tau$ каждому значению ординаты на рис. 3.1 соответствуют две точки на абсциссе. Чтобы установить, какое из значений $I/I_{изм}$ соответствует действительности, достаточно несколько удалить препарат от счетчика. Если при этом $I_{изм}$ уменьшится, то отношение $I/I_{изм}$ следует брать слева от максимума кривой; если же $I_{изм}$ увеличится, то значение $I/I_{изм}$ следует искать справа от максимума.

В случае разрешающего времени *непродлевающегося* типа попадание в счетчик новой частицы за время τ после предыдущего отсчета никак не влияет на состояние регистрирующей системы. Вне зависимости от того, попадали или не попадали в это время частицы в счетчик, по прошествии времени τ он вновь готов к работе.

Пусть установкой зарегистрировано в единицу времени, например в 1 с, $I_{изм}$ частиц, тогда произведение $I_{изм}\tau$ будет показывать, на какую долю секунды установка утрачивает способность к счету. Если за 1 с в счетчик попадает I частиц, то среднее число незарегистрированных частиц составит $I \cdot I_{изм}\tau$ - Сумма зарегистрированных и незарегистрированных частиц должна равняться I :

$$I = I_{изм} + I \cdot I_{изм}\tau$$

откуда

$$(3.8)$$

$$I = \frac{I_{изм}}{1 - I_{изм}\tau}$$

Из уравнения (3.8) получаем:

$$I_{изм}\tau = 1 - (I/I_{изм})^{-1} \quad (3.9)$$

Зависимость $I_{изм}\tau = \varphi(I/I_{изм})$ представлена в табл. 3.2 и на рис. 3.2. При разрешающем времени непродлевающегося типа с ростом нагрузки на счетчик измераемая скорость счета стремится к максимальному значению

$$(I_{изм})_{макс} = I/\tau. \quad (3.10)$$

Оба рассмотренных типа разрешающего времени соответствуют предельным ситуациям, каждая из которых редко реализуется в чистом виде,

Таблица 3.2

Зависимость между поправкой на разрешающее время $I/I_{изм}$ и значением произведения $I_{изм}\tau$ рассчитанная по формуле (3.9)

| $I/I_{изм}$ | $I_{изм}\tau$ | $I/I_{изм}$ | $I_{изм}\tau$ | $I/I_{изм}$ | $I_{изм}\tau$ | $I/I_{изм}$ | $I_{изм}\tau$ | $I/I_{изм}$ | $I_{изм}\tau$ |
|-------------|---------------|-------------|---------------|-------------|---------------|-------------|---------------|-------------|---------------|
| 1,01 | 0,010 | 1,11 | 0,093 | — | — | 2,1 | 0,524 | 3,1 | 0,677 |
| 1,12 | 0,020 | 1,13 | 0,107 | — | — | 2,2 | 0,545 | 3,2 | 0,688 |
| 1,03 | 0,030 | 1,13 | 0,123 | 2,3 | 0,291 | 2,3 | 0,565 | 3,3 | 0,697 |
| 1,04 | 0,040 | 1,14 | 0,132 | 2,4 | 0,286 | 2,4 | 0,583 | 3,4 | 0,706 |
| 1,05 | 0,049 | 1,15 | 0,137 | 2,5 | 0,333 | 2,5 | 0,600 | 3,5 | 0,714 |
| 1,06 | 0,057 | 1,16 | 0,147 | 2,6 | 0,375 | 2,6 | 0,615 | 3,6 | 0,722 |
| 1,07 | 0,065 | 1,17 | 0,148 | 2,7 | 0,412 | 2,7 | 0,630 | 3,7 | 0,730 |
| 1,08 | 0,074 | 1,18 | 0,159 | 2,8 | 0,444 | 2,8 | 0,643 | 3,8 | 0,737 |
| 1,09 | 0,083 | 1,19 | 0,160 | 2,9 | 0,474 | 2,9 | 0,655 | 3,9 | 0,744 |
| 1,10 | 0,092 | 1,20 | 0,167 | 3,0 | 0,500 | 3,0 | 0,667 | 4,0 | 0,750 |

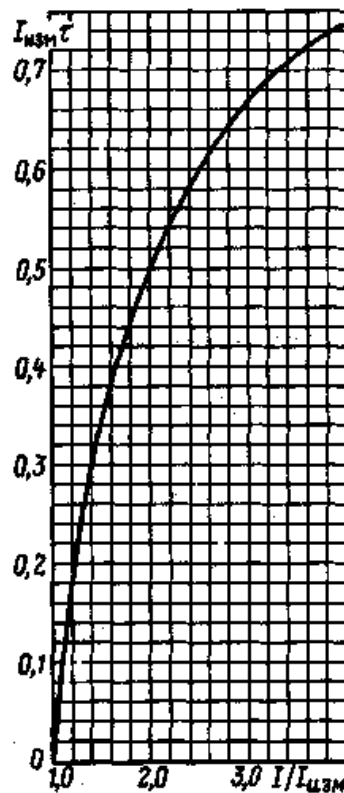


Рис. 3.2. Зависимость между поправкой на разрешающее время $I/I_{изм}$ и значением произведения $I_{изм}\tau$ рассчитанная по формуле (3.9)

Однако при малой нагрузке на счетчик различие между разрешающим временем продлевающегося и непродлевающегося типов несущественно. Действительно, если значение $I\tau$ мало, то множитель $\exp(I\tau)$ можно принять приближенно равным $1 + I\tau$, что дает $I = I_{изм}(1 + I\tau)$ т.е. формулу (3.8). Из сопос-

тавления данных табл. 3.1 и 3.2 видно, что значения $I_{изм} \tau$, вычисленные по различным формулам, практически совпадают вплоть до $I_{изм} \tau = 0,05 \div 0,06$. Таким образом, если $I_{изм} \tau$ не превышает 0,06 (для счетчиков Гейгера-Мюллера это соответствует скорости счета около 300 имп/с, для сцинтилляционных счетчиков — около 60 000 имп/с), то для расчета полного числа частиц, попавших в счетчик, при любом типе разрешающего времени можно пользоваться соотношением (3.9), полученным из (3.8).

Для вычисления относительной погрешности скорости счета, вызванной просчетом частиц, целесообразно придать формуле (3.8) следующий вид:

$$(I - I_{изм})/I = I_{изм} \tau \quad (3.11)$$

Легко видеть, что, например, при $\tau = 2 \cdot 10^{-4}$ с для скорости счета 1000 имп/с, еще очень далекой от предельной загрузки регистрирующей аппаратуры, погрешность в счете частиц может достигать 20%.

С увеличением подаваемого на счетчик напряжения разрешающее время установки уменьшается — это иллюстрируется и данными, приведенными в табл. 3.3.

Таблица 3.3.

Зависимость разрешающего времени T от напряжения U на счетчике Гейгера-Мюллера в области плато (осциллографические данные)

| $U, В$ | 1300 | 1400 | 1550 | 1600 | 1650 | 1700 | 1750 |
|-------------------|------|------|------|------|------|------|------|
| $\tau, 10^{-4} с$ | 6,7 | 3,1 | 2,5 | 2,1 | 1,9 | 1,8 | 1,0 |

По мере "старения" счетной трубки разрешающее время увеличивается и ухудшается воспроизводимость показаний прибора. Для счетчиков Гейгера—Мюллера разрешающее время не должно превышать $3 \cdot 10^{-4}$ с/имп.

Определение разрешающего времени. Из выражения (3.8) следует, что

$$\tau = (I - I_{изм}) / (I \cdot I_{изм}) \quad (3.12)$$

Это соотношение позволяет определить разрешающее время, если известно полное число частиц I , попадающих в счетчик в единицу времени, и измеренная прибором скорость счета $I_{изм}$. Для определения τ измеряют скорость счета серии специально изготовленных стандартных препаратов с известным количеством радионуклида. (Вообще говоря, достаточно иметь серию препаратов различной активности, приготовленных из известных объемов исходного радиоактивного раствора). На графике (рис. 3.3) при малых скоростях счета, когда поправка на разрешающее время ничтожно мала, получается прямая. При дальнейшем увеличении активности препаратов наблюдается отступление от линейности. Экстраполируя начальный участок кривой, можно для каждой измеренной скорости счета $I_{изм(i)}$ определить полное число попавших в счетчик частиц $I_{(i)}$.

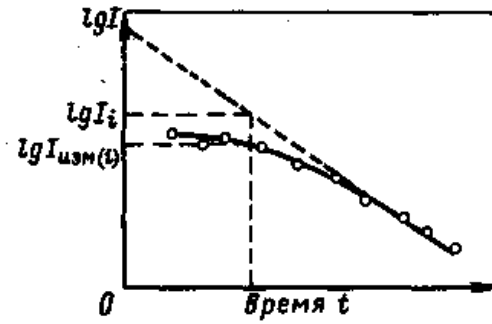
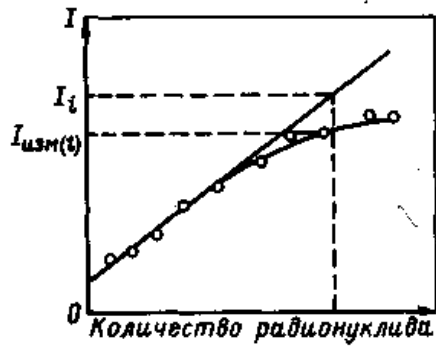


Рис. 3.3. Определение поправки на разрешающее время методом серии препаратов

Рис. 3.4. Определение поправки на разрешающее время методом кривой распада короткоживущего нуклида

Для определения поправки на разрешающее время не обязательно иметь серию стандартных препаратов; можно воспользоваться каким-либо короткоживущим радионуклидом (например, ^{128}I с периодом полураспада 25 мин). Свежеприготовленный препарат йода помещают в измерительный домик и проводят систематические наблюдения скорости счета через определенные интервалы времени (обычно через 5-10 мин). Когда радионуклид достаточно распадется, регистрируемое число импульсов будет соответствовать числу попавших в счетчик частиц.

Без построения градуировочной кривой можно определить разрешающее время методом двух препаратов.

$$I_{1,2} = I_1 + I_2$$

Распишем данное выражение в виде

$$\frac{I_{изм(1,2)}}{1 - I_{изм(1,2)}\tau} = \frac{I_{изм(1)}}{1 - I_{изм(1)}\tau} + \frac{I_{изм(2)}}{1 - I_{изм(2)}\tau} \quad (3.13)$$

При выводе формулы для определения τ по данным измерения двух препаратов возможны различные подходы. Если выполняется условие $I_{изм(1)} \approx I_{изм(2)}$ то в знаменателях в правой части равенства (3.13) вместо этих величин можно, подставить $(I_{изм(1)} + I_{изм(2)})/2$. В результате получится уравнение

$$I_{изм(1,2)} \left[1 - \frac{I_{изм(1)} + I_{изм(2)}}{2} \tau \right] = [I_{изм(1)} + I_{изм(2)}] \cdot [1 - I_{изм(1,2)}\tau] \quad (3.14)$$

откуда

$$\tau = \frac{2[I_{изм(1)} + I_{изм(2)} - I_{изм(1,2)}]}{[I_{изм(1)} + I_{изм(2)}] \cdot I_{изм(1,2)}} \quad (3.15)$$

Принимая во внимание, что τ мало, можно пренебречь в уравнении (3.13) членами, содержащими τ^2 :

$$2I_{изм(1)}I_{изм(2)}\tau = I_{изм(1)} + I_{изм(2)} - I_{изм(1,2)}$$

откуда

(3.16)

$$\tau = \frac{I_{изм(1)} + I_{изм(2)} - I_{изм(1,2)}}{2I_{изм(1)}I_{изм(2)}}$$

Выражение (3.8) можно представить в виде бинорма $I = I_{изм}(1 - I_{изм}\tau)^{-1}$. Если в разложении бинорма ограничиться двумя первыми членами, то получится приближенное соотношение $I \approx I_{изм}(I + I_{изм}\tau)$. Тогда на основании (3.13) можно записать:

$$I_{изм(1,2)} + I_{изм(1,2)}^2\tau = I_{изм(1)} + I_{изм(1)}^2\tau + I_{изм(2)} + I_{изм(2)}^2\tau$$

и, таким образом,

$$\tau = \frac{I_{изм(1)} + I_{изм(2)} - I_{изм(1,2)}}{I_{изм(1,2)}^2 - I_{изм(1)}^2 - I_{изм(2)}^2}$$
(3.17)

Более точную формулу для расчета τ можно получить, не пренебрегая в выражении (3.13) членами, содержащими τ^2 , а решая соответствующее квадратное уравнение. Равенство (3.13) преобразуется к виду

$$I_{изм(1)}I_{изм(2)}I_{изм(1,2)}\tau^2 - 2I_{изм(1)}I_{изм(2)}\tau + [I_{изм(1)} + I_{изм(2)} - I_{изм(1,2)}] = 0$$
(3.18)

Решение этого уравнения может быть записано как

$$\tau = \frac{1 - \sqrt{\frac{[I_{изм(1,2)} - I_{изм(1)}] \cdot [I_{изм(1,2)} - I_{изм(2)}]}{I_{изм(1)}I_{изм(2)}}}}{I_{изм(1,2)}}$$
(3.19)

Эффективность детекторов к β -излучению. Эффективностью ε детектора к данному виду излучения называют вероятность того, что частица или квант, проникающие в чувствительный объем детектора, вызовут в нем процессы, позволяющие провести регистрацию этой частицы или кванта. Эффективность выражается отношением числа частиц или квантов I , вызвавших процессы, позволяющие провести их регистрацию, к полному числу частиц или квантов I_d , попавших в чувствительный объем детектора (прошедших через слой воздуха между препаратом и детектором и стенку детектора общей толщиной d) за время регистрации:

$$\varepsilon = I/I_d$$
(3.20)

Величину ε называют также коэффициентом эффективности.

Эффективность к излучению данного вида — характеристика детектора, не зависящая от разрешающего времени. Поэтому в определении и говорится о числе частиц или квантов, вызвавших процессы, позволяющие провести их регистрацию, а не о числе зарегистрированных частиц или квантов, которое будет меньше из-за связанных с разрешающим временем просчетов.

Эффективность к β -излучению счетчиков Гейгера-Мюллера близка к 1 ($\varepsilon = 0,995$). За счет возникновения ложных импульсов она может превышать 1, что проявляется, в частности, в некотором наклоне плато счетчиков, работающих в гейгеровском режиме (обычно эти отклонения лежат в пределах общих аппаратных погрешностей). Для пропорциональных счетчиков эффективность к β -излучению зависит от энергии излучения. Эффективность сцинтилляционных счетчиков к β -излучению теоретически может достигать 100%, но часто бывает ниже из-за рассеяния светового излучения в сцинтилляторе.

Геометрические условия измерений. Геометрический коэффициент. Потери излучения, обусловленные взаимным расположением препарата (источника излучения) и счетчика, учитываются геометрической поправкой, называемой геометрическим коэффициентом, или поправкой на телесный угол. Геометрический коэффициент η равен отношению телесного угла ω под которым счетчик облучается источником излучения, к полному телесному углу 4π (таким образом, понятия "геометрический коэффициент" и "относительный телесный угол" являются синонимами). Если излучение источника изотропно, то геометрический коэффициент определяет, какая доля общего числа A частиц или квантов, испускаемых препаратом, попадает на счетчик. Таким образом,

$$\eta = \omega / 4\pi = K_{\Omega} \quad (3.21)$$

или при условии изотропности излучения

$$\eta = I_{\eta} / A \quad (3.22)$$

где I_{η} — число частиц или квантов, испускаемых препаратом в направлении счетчика.

Часто η можно определить расчетным путем. Получаемые при этом формулы определяют долю излучения, попадающего на счетчик от точечного, круглого или прямоугольного источника, если излучение не рассеивается промежуточной средой (воздухом), а также, если нет отражения излучения от стенок домика. Влияние этих факторов может существенно изменить долю падающих на счетчик частиц. Мы не говорим здесь об эффектах самоослабления излучения в слое самого препарата и обратного рассеяния от подложки, на которую нанесен препарат, так как эти эффекты обычно учитываются введением соответствующих поправочных коэффициентов.

Когда вследствие сложной конфигурации препарата расчет становится невозможным, прибегают к экспериментальному определению геометрического коэффициента.

Расчет телесного угла для торцового счетчика.

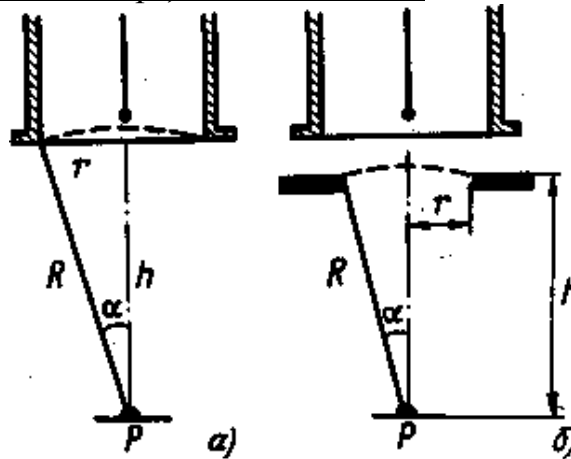


Рис. 3.5. К расчету геометрического коэффициента для торцового счетчика без диафрагмы (а) и с диафрагмой (б) (P -измеряемый образец)

Рассмотрим точечный источник, расположенный на продолжении оси торцового счетчика. Пусть r — радиус окна счетчика (рис. 3.5,а), а h - расстояние от препарата до окна счетчика. Телесный угол ω , под которым счетчик облучается источником излучения, равен:

$$\omega = \frac{\sigma}{R^2} \quad (3.23)$$

где σ — поверхность шарового сегмента радиусом $R = \sqrt{h^2 + r^2}$. Принимая во внимание, что $\sigma = 2\pi R(R - h)$, и заменяя R на $\sqrt{h^2 + r^2}$, получаем:

$$\omega = 2\pi \left(1 - \frac{h}{\sqrt{h^2 + r^2}} \right) = 2\pi(1 - \cos \alpha) \quad (3.24)$$

где α - апертура угла, под которым чувствительный объем счетчика виден из препарата, причем $\cos \alpha = h / \sqrt{h^2 + r^2}$

Подставив найденное значение ω в формулу (3.24), окончательно получим:

$$\eta = 0,5 \left(1 - \frac{h}{\sqrt{h^2 + r^2}} \right) = 0,5(1 - \cos \alpha) \quad (3.25)$$

Если на максимально близком расстоянии от окна счетчика установить диафрагму, диаметр которой в 1,5-2 раза меньше диаметра окна счетчика (см.рис. 3.5,б), то η по-прежнему будет выражаться формулой (3.25), но r будет соответствовать радиусу отверстия диафрагмы, а h - расстоянию от препарата до верхней плоскости диафрагмы. Диафрагмы изготовляют обычно из листа алюминия или латуни толщиной не менее слоя полного поглощения β -частиц исследуемого излучения; края диафрагмы делают скошенными по направлению крайних лучей от препарата. Применение диафрагм позволяет точнее фиксировать относительный телесный угол, особенно если неизвестно точное положе-

ние чувствительного объема счетчика. Одновременно улучшается воспроизводимость показаний прибора.

Таблица 3.4

Значения геометрического коэффициента η при различных расстояниях от торцового счетчика до точечного препарата, расположенного по его оси

| h/r | η | h/r | η | h/r | η | h/r | η |
|-------|--------|-------|--------|-------|--------|-------|--------|
| 0,05 | 0,475 | 0,40 | 0,314 | 1,2 | 0,116 | 4,0 | 0,0149 |
| 0,10 | 0,450 | 0,50 | 0,276 | 1,4 | 0,093 | 4,5 | 0,0118 |
| 0,15 | 0,426 | 0,60 | 0,243 | 1,6 | 0,076 | 5,0 | 0,0097 |
| 0,20 | 0,402 | 0,70 | 0,213 | 1,8 | 0,063 | 6,0 | 0,0068 |
| 0,25 | 0,379 | 0,80 | 0,188 | 2,0 | 0,053 | 7,0 | 0,0050 |
| 0,30 | 0,356 | 0,90 | 0,165 | 2,5 | 0,036 | 8,0 | 0,0038 |
| 0,35 | 0,335 | 1,00 | 0,146 | 3,0 | 0,026 | 9,0 | 0,0030 |
| | | | | 3,5 | 0,019 | 10,0 | 0,0025 |

Как видно из табл. 3.4, значения η при малых h сильно изменяются в результате небольших вертикальных смещений препарата относительно счетчика. При малых расстояниях между источником и счетчиком значение телесного угла сильно зависит даже от небольших изменений этого расстояния. Так, для того чтобы погрешность определения телесного угла не превышала 0,5%, источник необходимо установить с отклонением не более $\pm 0,04$ мм. при расстоянии между источником и счетчиком от 5 до 10 мм.; $\pm 0,1$ мм — при расстоянии 5 см. Очевидно, что обеспечение такой высокой точности установки источника практически неосуществимо, если учесть, что измеряемый источник обычно бывает нанесен на подложку из тонкой пленки, которая может прогибаться в ту или другую сторону. Менее точная установка источника допустима при больших расстояниях между источником и счетчиком, однако увеличение этого расстояния невыгодно из-за сильного уменьшения скорости счета вследствие уменьшения телесного угла.

Чтобы улучшить воспроизводимость геометрических условий измерения, следует располагать препарат возможно дальше от счетчика. Однако с увеличением расстояния возрастает поглощение и рассеяние в воздухе β -излучения низкой энергии, а из-за уменьшения телесного угла падает скорость счета. Поэтому целесообразно помещать препарат в среднем на расстоянии 3–4 см от окошка счетчика с диаметром входного окна 20 мм ($h/r = 3 \div 4$).

Если размеры препарата таковы, что его нельзя рассматривать как точечный, то значения η будут отличаться от значений, рассчитанных по формуле (3.25).

Расчет η для торцового счетчика и круглого источника излучения в общем виде был дан К.А. Петржаком и М.А. Баком. Их решения предусматривают и тот случай, когда размеры источника излучения меньше размеров мишени (окно счетчика или расположенной перед ним диафрагмы), и случай, когда размеры источника больше размеров мишени.

Пусть, как и прежде, h - расстояние от препарата до окна счетчика (или до верхней плоскости расположенной перед счетчиком диафрагмы), а r — радиус окна счетчика (диафрагмы). Обозначим s — радиус источника излучения. При $s/r < 1$ авторы цитируемой работы получили следующую формулу для расчета относительного телесного угла:

$$\eta = 0.5 \left\{ 1 - \frac{h}{R_m} - \frac{3}{8} \frac{hr^2}{R_m^3} \frac{s^2}{R_m^2} - \frac{5}{64} \frac{hr^2}{R_m^3} \frac{s^4}{R_m^4} \left(3 - 7 \frac{h^2}{R_m^2} \right) - \frac{35}{1024} \frac{hr^2}{R_m^3} \frac{s^6}{R_m^6} \left(5 - 30 \frac{h^2}{R_m^2} + 33 \frac{h^4}{R_m^4} \right) - \dots \right\} \quad (3.26)$$

$$R_m = \sqrt{h^2 + r^2}$$

При $r/s < 1$ (соответственно $s/r > 1$) выражение для расчета геометрического коэффициента принимает вид:

$$\eta = 0.5 \frac{r^2}{s^2} \left\{ 1 - \frac{h}{R_S} - \frac{3}{8} \frac{hs^2}{R_S^3} \frac{r^2}{R_S^2} - \frac{5}{64} \frac{hs^2}{R_S^3} \frac{r^4}{R_S^4} \left(3 - 7 \frac{h^2}{R_S^2} \right) - \frac{35}{1024} \frac{hr^2}{R_S^3} \frac{s^6}{R_S^6} \left(5 - 30 \frac{h^2}{R_S^2} + 33 \frac{h^4}{R_S^4} \right) - \dots \right\} \quad (3.27)$$

$$R_S = \sqrt{h^2 + s^2}$$

Таблица 3.5.

Значения геометрического коэффициента η для препарата радиусом s

| h/r | s/r | | | | s/r | | | | |
|-------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|---------|
| | 0,0 | 0,25 | 0,50 | 0,75 | 1,00 | 1,25 | 2,0 | 5,0 | 10,0 |
| 0,0 | 0,500 | 0,310 | 0,200 | 0,100 | 0,500 | 0,320 | 0,125 | 0,0200 | 0,00500 |
| 0,1 | 0,450 | 0,440 | 0,440 | 0,438 | 0,418 | 0,286 | 0,118 | 0,0196 | 0,00493 |
| 0,2 | 0,403 | 0,470 | 0,392 | 0,364 | 0,345 | 0,253 | 0,111 | 0,0192 | 0,00488 |
| 0,4 | 0,314 | 0,311 | 0,200 | 0,204 | 0,240 | 0,197 | 0,0980 | 0,0184 | 0,00478 |
| 0,6 | 0,276 | 0,271 | 0,202 | 0,250 | 0,206 | 0,175 | 0,0923 | 0,0180 | 0,00473 |
| 0,8 | 0,243 | 0,242 | 0,209 | 0,199 | 0,181 | 0,158 | 0,0852 | 0,0176 | 0,00468 |
| 1,0 | 0,133 | 0,168 | 0,176 | 0,188 | 0,143 | 0,127 | 0,0751 | 0,0168 | 0,00458 |
| 1,1 | 0,145 | 0,148 | 0,178 | 0,172 | 0,115 | 0,102 | 0,0661 | 0,0160 | 0,00448 |
| 1,2 | 0,152 | 0,162 | 0,171 | 0,171 | 0,0466 | 0,0448 | 0,0390 | 0,0125 | 0,00400 |
| 1,3 | 0,156 | 0,165 | 0,168 | 0,168 | 0,0240 | 0,0238 | 0,0200 | 0,0096 | 0,00354 |
| 1,4 | 0,158 | 0,164 | 0,166 | 0,165 | 0,0143 | 0,0142 | 0,0128 | 0,0074 | 0,00313 |
| 1,5 | 0,158 | 0,162 | 0,167 | 0,165 | 0,0095 | 0,0094 | 0,0087 | 0,0058 | 0,00276 |
| 10,0 | 0,0025 | 0,0025 | 0,0025 | 0,0025 | 0,0025 | 0,0023 | 0,0022 | 0,0020 | 0,00146 |

Когда радиус препарата равен радиусу окна счетной трубки ($s/r = 1$), выражения (3.26) и (3.27) совпадают. Для точечного источника ($s = 0$) соотношение (3.26) совпадает с (3.25).

При практическом использовании формул Петржака и Бака часто оказывается возможным ограничиться первыми тремя-четырьмя членами рядов в формулах (3.26) и (3.27). В табл. 3.25 приводятся значения геометрического коэффициента. Расстояние и размеры выражены здесь в единицах радиуса мишени (h/r , s/r). Значения для $s/r=0$ соответствуют случаю точечного источника.

Формулы для расчета геометрического коэффициента в случае точечного источника излучения, смещенного относительно оси счетчика. Если точечный препарат P находится на расстоянии h от плоскости мишени (например, окна торцового счетчика) радиусом r , а ρ – расстояние от центра мишени до проекции точки P на плоскость мишени (рис. 3.6), то поправка на телесный угол может быть найдена по формуле

$$\eta = \frac{1}{2\pi\sqrt{1 + [(r/h)(1 + \rho/r)]^2}} \left\{ \left[1 + \frac{n}{2} \left(1 + \frac{\rho}{r} \right) \right] \Pi(n, k^2) + \left[1 + \frac{n'}{2} \left(1 - \frac{\rho}{r} \right) \right] \Pi(n', k^2 - 2K(k^2)) \right\} \quad (3.28)$$

$$\text{где } n = -\frac{2}{1 + \sqrt{1 + (h/r)^2}}; \quad n' = -\frac{n}{1 + n}; \quad k^2 = \frac{4\pi/\rho}{(h/r)^2 + (1 + \rho/r)^2}$$

где $K(k^2)$, $\Pi(n, k^2)$, $\Pi(n', k^2)$ – полные эллиптические интегралы первого и третьего рода.

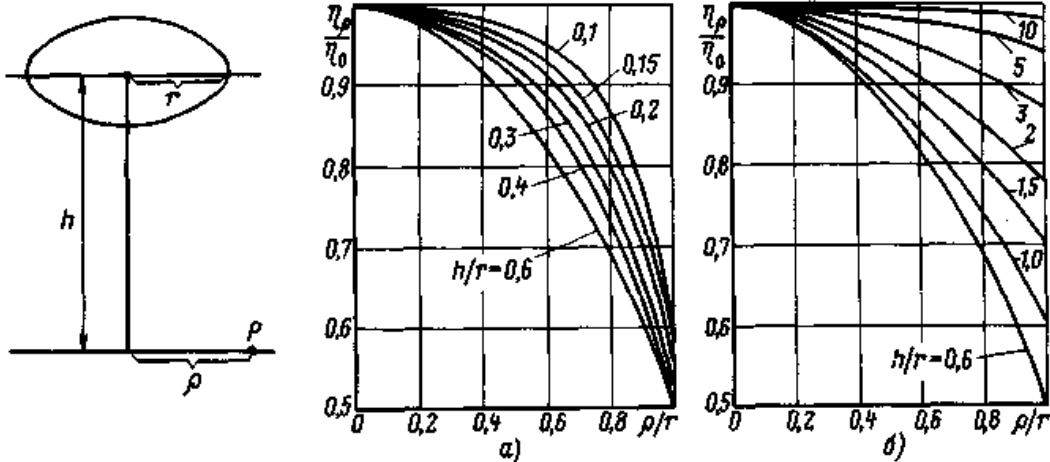


Рис. 3.6. К расчету геометрического коэффициента для точечного препарата, расположенного в любой точке пространства

Рис. 3.7. Отношение телесного угла η , для точечного препарата, смещенного на расстояние ρ от центральной оси, к телесному углу η_0 для точечного препарата, расположенного на продолжении оси детектора ($\rho=0$), при различном расстоянии h/r от препарата до плоскости мишени

На рис. 3.7 приведены данные, характеризующие влияние смещения ρ на значения η при различном расстоянии от препарата до плоскости мишени. Из рисунка видно, что при $h/r > 0,6$ погрешность, обусловленная неравномерностью распределения радиоактивного вещества в препарате, уменьшается с удалением препарата от счетчика. Для препаратов, радиус которых не превышает $0,5r$,

расположенных на расстояниях $h > 2r$ от счетчика, различие в скоростях счета при равномерном и периферическом распределении радиоактивного вещества в препарате составляет не более 4%.

Следует подчеркнуть важность выбора таких условий измерения, чтобы влияние неоднородности распределения радиоактивного вещества в измеряемом образце было минимальным. Дело в том, что **при изготовлении твердых радиоактивных препаратов вещество часто распределяется по периметру высушенной на подложке капли**, причем активность периферической части препарата может быть в 50 и более раз выше, чем в середине.

Определение геометрического коэффициента η с помощью стандартных препаратов. При экспериментальном определении относительного телесного угла пользуются стандартными препаратами. При наличии стандартного препарата с известной активностью A η можно найти по формуле $\eta = I_\eta / A$

Обычно применяют стандартные препараты, испускающие β -излучение. Пусть, например, β -излучатель с простым спектром и достаточно высокой максимальной энергией используется для определения η установки со счетчиком Гейгера—Мюллера. Если толщины препарата и подложки таковы, что можно пренебречь эффектами самоослабления и обратного рассеяния, то при переходе от измеренной детектором скорости счета к числу частиц, испускаемых препаратом в направлении счетчика, можно ограничиться лишь учетом поправки на ослабление излучения в стенке счетчика и в слое воздуха между препаратом и счетчиком, которая в данном случае определяется как

$$k = I / I_\eta \quad (3.29)$$

где I — скорость счета, исправленная на разрешающее время и фон. Подставляя I_η находим:

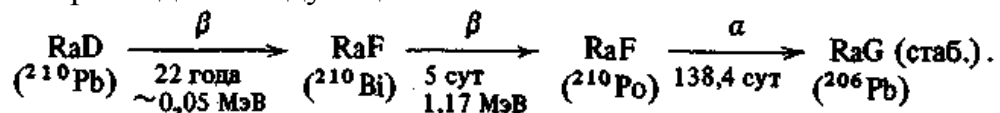
$$\eta = I / Ak \quad (3.30)$$

Если препарат содержит радионуклид со сложным составом β -излучения, то выражение принимает вид:

$$\eta = I / (A_1 k_1 + A_2 k_2 + A_3 k_3 + \dots) \quad (3.31)$$

В качестве стандартного образца выбирают радионуклиды, активность которых может быть установлена независимыми методами.

Использование препаратов, содержащих радионуклид ^{210}Pb (RaD), позволяет получать результаты с погрешностью не более 1-2%. Подобные излучатели претерпевают распад по следующей схеме:



Препараты RaD + RaE + RaF могут быть получены в виде "невесомого" слоя на тонкой органической пленке, так что эффекты обратного рассеяния и самоослабления практически отсутствуют.

Измерения проводят по простому β -излучению ^{210}Bi (RaE); низкоэнергетическое β -излучение RaD и α -излучение RaF полностью поглощаются слоем по-

глотителя толщиной 5 мг/см². Поэтому такие образцы удобно применять и для определения геометрического коэффициента торцовых счетчиков, экранируя их в случае необходимости тонким слоем фольги. Абсолютная активность RaE может быть установлена, например, непосредственным измерением числа α -частиц, испускаемых ²¹⁰Po (RaF). Эти измерения осуществляются на импульсных камерах или пропорциональных счетчиках.

Отечественная промышленность выпускает образцовые источники β -излучения с радионуклидами ⁹⁰Sr+⁹⁰Y, ²⁰⁴Tl, ⁶⁰Co. Такие источники обычно представляют собой металлические диски, в углубление которых нанесен, зафиксирован и загерметизирован радиоактивный препарат. Имеются источники различного диаметра и с различной площадью активной поверхности. В паспорте к источнику указывается уровень внешнего излучения (в частицах в секунду) в угол 2π , а также погрешность определения этой величины.

Если образцовый источник используется для определения геометрического коэффициента, то достаточно учитывать лишь поправку k на ослабление излучения в стенке счетчика и слое воздуха между препаратом и счетчиком

Схема распада регистрируемого радионуклида. Если регистрируемое излучение состоит из нескольких компонентов, из которых могут регистрироваться не обязательно все, то необходимо учитывать вероятность p_i таких путей распада, при которых испускаются частицы или кванты определенной энергии. Эту вероятность, численно равную доле излучения данного вида (данной энергии) по отношению к общему числу актов распада, в радиометрии называют поправкой на схему распада.

Данные о степени разветвления распада радионуклидов могут быть представлены в форме таблиц или графических схем. На схеме распада горизонтальными линиями обозначают уровни энергии исходного и конечного ядра и промежуточных состояний, а стрелками, соединяющими энергетические уровни, – характер ядерных превращений: γ -излучение – вертикальной стрелкой, β -распад – тонкой стрелкой, направленной вправо, и т.д. Возле стрелок указывают энергию излучения (обычно в мегаэлектронвольтах) и выход части или квантов данной энергии на один акт распада (в процентах). Например ⁴²K испускает две группы β -частиц: 18% частиц относится к парциальному спектру с $E_{\max} = 1,99$ МэВ, а 82% – к парциальному спектру с $E_{\max} = 3,52$ МэВ. Выход γ -квантов с энергией 1,53 МэВ также составляет 18%, так как эти кванты испускаются с энергетического уровня, к которому приводит β -распад с энергией 1,99 МэВ. Таким образом, в качестве поправок на схему распада для ⁴²K следует взять значения: $p_{\beta 1}=0,18$, $p_{\beta 2}=0,82$ и $p_{\gamma}=0,18$. Для ⁶⁰Co $p_{\beta 1}=1$ $p_{\gamma 1}=1 > p_{\gamma 2}=1$ – каждый акт распада сопровождается испусканием β -частицы и двух γ -квантов.

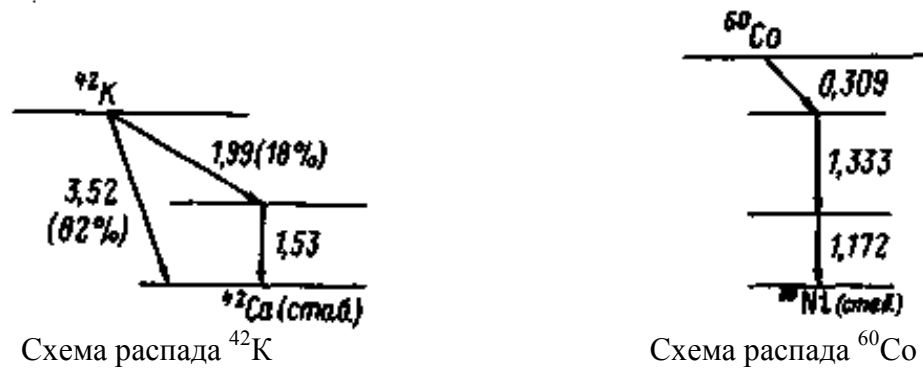


Рис. 3.8. Схемы распада различных нуклидов

Необходимые сведения о поправках на схему распада радионуклидов можно найти в таблицах изотопов и справочниках.

Ослабление β -излучения в среде, отделяющей препарат от чувствительного объема счетчика. Поправочный коэффициент ослабления k определяется как отношение числа частиц I_d , проникающих в чувствительный объем детектора, к числу частиц I_q , испускаемых в направлении детектора с поверхности препарата, нанесенного на некоторую подложку:

$$k = I_d / I_q \quad (3.32)$$

В силу экспоненциального характера ослабления

$$k = \exp(-\mu d) \quad (3.33)$$

где d — полная толщина поглощающего слоя. Она складывается из толщины стенки (окна) счетчика, слоя воздуха между препаратом и счетчиком, а также (если они используются в работе) слоя дополнительных поглотителей:

$$d = d_{\text{стен}} + d_{\text{возд}} + d_{\text{погл}}$$

Толщину слоя воздуха ($\text{г}/\text{см}^2$) при 760 мм рт. ст. и 25 °С определяют по формуле

$$d_{\text{возд}} = 0,00118 l_{\text{возд}}$$

где $l_{\text{возд}}$ — расстояние между препаратом и стенкой счетчика, см.

При $d/R_{\text{макс}} > 0.3$ экспоненциальное соотношение уже несправедливо. В этом случае приходится пользоваться различными эмпирическими и полуэмпирическими графиками. Из-за различий формы β -спектров и зависимости кривых ослабления от условий измерения (известно, что и начальные участки кривых ослабления могут обнаруживать отступления от экспоненциальности) точность поправок, получаемых с помощью формулы (3.33) или графиков, обычно невелика. Поэтому наиболее предпочтительно получать поправочный коэффициент ослабления прямым определением скорости счета при нулевой толщине поглотителя, а это довольно сложная и трудоемкая задача. Нередко для на-

хождения скорости счета при нулевой толщине поглотителя прибегают к экстраполяции полулогарифмических кривых ослабления до пересечения с осью ординат, но такой путь возможен лишь при строго экспоненциальном ходе кривых $\lg I = f(d)$. Форма кривых ослабления была предметом многочисленных исследований, однако большинство работ в этой области выполнено без определения скорости счета при нулевой толщине поглотителя. Рассмотрим некоторые из имеющихся результатов.

Форма кривых ослабления при малых толщинах поглотителя. Для определения точного значения скорости счета в отсутствие поглотителей при выбранных геометрических условиях ($\eta=0,0165$) использовался счетчик с открытым окном, воспроизводящий геометрию обычного торцового счетчика (рис. 3.9). Изменяя давление рабочего газа в таком счетчике, можно снимать кривые ослабления вплоть до толщин поглотителя, составляющих десятые доли миллиграмма на квадратный сантиметр.

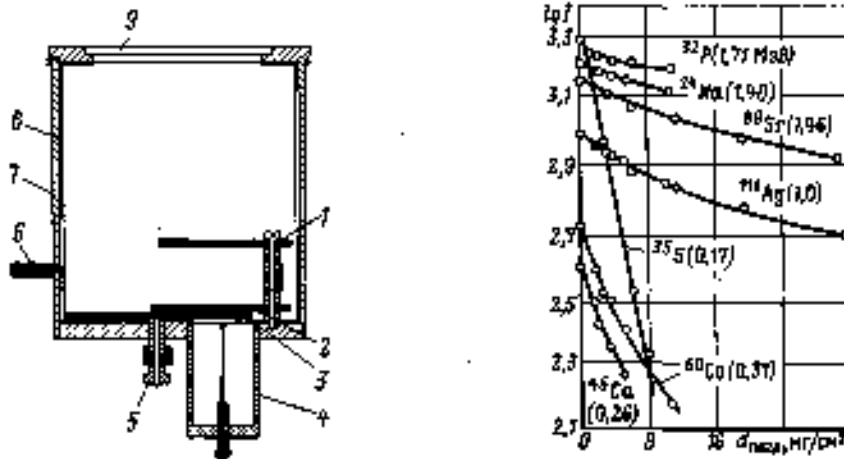


Рис. 3.9. Счетчик с открытым окном, предназначенный для градуировки торцовых счетчиков:

1 - полочка для источника; 2 - диафрагма; 3 - диск с поглотителями; 4 - счетчик; 5 - винт для смены поглотителей; 6 - откачка; 7 - вакуумная камера; 8 - алюминиевая обкладка; 9 - окно

Рис. 3.10. Начальные участки кривых ослабления в слюде β частиц с различной максимальной энергией $E_{\text{макс}}$, МэВ

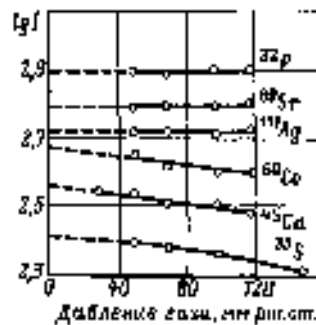


Рис. 3.11. Кривые ослабления β -излучения различных радионуклидов в газе, заполняющем счетчик с открытым окном

На рис. 3.10 показаны полученные кривые ослабления β -частиц в поглотителях из слюды. Из рисунка видно, что для β -излучателей с максимальными энергиями спектра от 0,26 МэВ (^{45}Ca) до 1,71 МэВ (^{32}P) кривые не следуют экспоненциальному закону — наклон полулогарифмических кривых ослабления убывает с толщиной поглотителя. Если же учесть ослабление β -частиц в слое газа на пути от препарата к счетчику (этот эффект проявляется только для низкоэнергетических β -излучателей, см. рис. 3.11), то окажется, что и для $E_{\text{макс}} = 0.17$ МэВ (^{35}S) кривая ослабления при малой толщине поглощающего слоя будет отклоняться вверх.

В другой работе применялся счетчик с открытым окном, заполняемый смесью гелия с парами спирта до давления 100 мм рт. ст.; геометрический коэффициент составлял 0,0055 (препарат диаметром менее 8 мм располагали на расстоянии 50 мм от диафрагмы диаметром 15 мм). Были исследованы начальные участки кривых ослабления в алюминии для β -излучателей с максимальной энергией от 0,16 до 2,26 МэВ. Кривые ослабления снимали для трех и более (до 17) препаратов и полученные результаты усредняли. Данные хорошо совпадали с результатами предыдущей работы для слюды: *более быстрый (по сравнению с экспоненциальным) спад начальных участков кривых ослабления наблюдался вплоть до толщин поглотителя 6-10 мг/см².*

Такой ход кривых ослабления согласуется с законом торможения электронов. В поглотителях малой толщины поглощаются вследствие торможения наиболее медленные электроны, а торможение и рассеяние электронов происходят тем сильнее, чем меньше их энергия. Более крутой ход кривых ослабления при малых толщинах не вызван избытком медленных электронов в спектре или наличием заметного количества конверсионных электронов малой энергии, так как среди радионуклидов, для которых наблюдался этот ход, есть ^{32}P , ^{89}Sr , ^{45}Ca , которые имеют простые спектры и β -распад которых не сопровождается испусканием излучения и конверсионных электронов.

Не исключена возможность, что неэкспоненциальный характер кривых ослабления на начальном участке обусловлен побочными процессами, имеющими место при работе с торцовыми счетчиками. Можно ожидать, что кривая ослабления за вычетом этих побочных эффектов (например, снятая на цилиндрическом счетчике с коаксиально расположенным препаратом) будет иметь на начальном участке строго экспоненциальный характер.

В заключение еще раз подчеркнем, что неэкспоненциальный характер ослабления β -излучения при малых значениях толщины поглощающего слоя может приводить к значительным погрешностям при абсолютных измерениях радиоактивности, если поправку на ослабление получают экстраполяцией к нулю кривых ослабления, снятых начиная с нескольких миллиграммов на квадратный сантиметр. Наиболее точно скорость счета при нулевой толщине поглотителя может быть определена измерением абсолютной активности эквивалент-

ного образца в 4π -счетчике и введением поправки на геометрический коэффициент.

Поправка на эффективную толщину поглощающего слоя. При построении кривых ослабления β -излучения часто вводят поправку на так называемую эффективную толщину поглотителя [10,42]. Приведем вывод соответствующих поправочных коэффициентов для торцового счетчика.

Предполагается, что ослабление параллельного пучка β -частиц на начальном участке следует экспоненциальному закону. Частицы, падающие на плоский поглотитель толщиной l (см) под углом α к нормали, должны проходить в нем расстояние l' , превышающее расстояние, которое проходят частицы, падающие перпендикулярно. Как следует из рис. 3.12,

$$l' = l / \cos \alpha \quad (3.34)$$

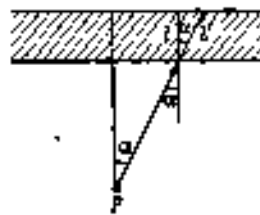


Рис. 3.12. К расчету поправки на эффективную толщину поглотителя (P - измеряемый образец)

Для торцового счетчика и точечного препарата $\cos \alpha$ можно связать с η

$$\cos \alpha = 1 - 2\eta \quad (3.35)$$

Используя соотношения (3.34), (3.35) и экспоненциальный закон ослабления, получаем выражение для коэффициента ослабления пучка β -частиц, падающих на поглотитель в пределах достаточно малого телесного угла η :

$$k = \exp\left(-\frac{\mu' l}{1 - 2\eta}\right) \quad (3.36)$$

Таким образом, ослабление излучения при любых значениях относительного телесного угла η будет определяться как

$$I / I_0 = \int_0^{\eta} \exp\left(-\frac{\mu' l}{1 - 2\eta'}\right) d\eta' \quad (3.37)$$

Это выражение можно численно интегрировать, определяя тем самым I/I_0 для различных значений толщины поглотителя и η . Разумеется, здесь вместо линейного коэффициента ослабления μ' (см^{-1}) и толщины поглотителя l (см) можно подставлять массовый коэффициент ослабления μ ($\text{см}^2/\text{г}$) и d ($\text{г}/\text{см}^2$).

Приближенная формула для расчета I/I_0 в случае торцового счетчика может быть записана в виде

$$\frac{I}{I_0} \approx \frac{1}{2} \left[\exp(-\mu d) - \mu^2 d^2 + \frac{\mu^3 d^3}{2 \cdot 2!} - \frac{\mu^4 d^4}{3 \cdot 3!} + \dots \right] - \frac{1}{2} \left[(1-2\eta) \exp\left(-\frac{\mu d}{1-2\eta}\right) - \mu d \ln(1-2\eta) - \frac{\mu^2 d^2}{1-2\eta} + \frac{\mu^3 d^3}{(1-2\eta) \cdot 2 \cdot 2!} \dots \right] \quad (3.38)$$

Используя это (или какое-либо иное) решение уравнения (3.37), можно найти эффективную толщину поглотителя, определяемую соотношением

$$\frac{I}{I_0} = \eta \exp(-\mu d_{\text{эфф}}) \quad (3.39)$$

Преобразуя уравнение (3.39), получаем:

$$\mu d_{\text{эфф}} = \ln \eta - \ln(I/I_0) \quad (3.40)$$

или

$$\frac{d_{\text{эфф}}}{d} = \frac{\ln \eta - \ln(I/I_0)}{0.693 d / d_{1/2}} \quad (3.41)$$

Значения $d_{\text{эфф}}/d$ определяются для различных значений μd и η с использованием выражений (3.38) и (3.41).

На рис. 3.13 приведен график зависимости $d_{\text{эфф}}/d = f(\eta)$ для значений $\mu d = 0,1$ ($d_{1/2}/d = 6,9$) и $\mu d = 0,6$ ($d_{1/2}/d = 1,16$). В табл. 3.36 даны значения $d_{\text{эфф}}/d$ для $\eta < 0,16$.

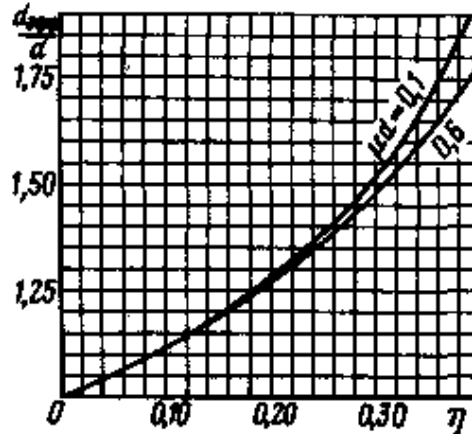


Рис. 3.13. Зависимость поправки на эффективную толщину поглотителя от геометрического коэффициента для торцового счетчика

Таблица.3.6

Поправки на эффективную толщину поглотителя $d_{эфф}/d$ для торцового счетчика при различных значениях относительного телесного угла η

| η | $d_{эфф}/d$ | η | $d_{эфф}/d$ |
|--------|-------------|--------|-------------|
| 0,01 | 1,010 | 0,09 | 1,102 |
| 0,02 | 1,020 | 0,10 | 1,115 |
| 0,03 | 1,030 | 0,11 | 1,128 |
| 0,04 | 1,040 | 0,12 | 1,141 |
| 0,05 | 1,050 | 0,13 | 0,155 |
| 0,06 | 1,063 | 0,14 | 1,170 |
| 0,07 | 1,076 | 0,15 | 1,185 |
| 0,08 | 1,090 | 0,16 | 1,200 |

Поправки на эффективную толщину поглотителя тесно связаны с конкретными условиями измерений (конструкция и размеры измерительного устройства, в которое помещаются счетчик и измеряемый препарат, положение поглотителей между препаратом и счетчиком и т.п.). Использование поправок, взятых из литературных источников без учета этих конкретных условий, может привести к тому, что кривые ослабления, полученные при различных значениях η , не только не будут сближаться, а наоборот, расхождение между ними станет более значительным. При большой толщине поглотителя, для которой ослабление параллельного пучка β -частиц становится неэкспоненциальным, введение поправок на эффективную толщину вообще теряет смысл. Поэтому поправки на эффективную толщину поглощающего слоя часто не учитывают, предпочитая пользоваться непосредственно значениями d , определяемыми условиями опыта.

Обратное рассеяние β -излучения от подложки, факторы, влияющие на обратное рассеяние. В 40-х годах XX века было обнаружено, что расхождения результатов измерения радиоактивности в различных лабораториях США достигают 50%; одна из причин такого расхождения — использование подложек из различного материала.

В результате процессов многократного рассеяния определенная доля β -частиц, испускаемых в направлении подложки, может отклоняться более чем на 90° от своего первоначального пути, т.е. по существу отражаться атомами подложки. Отношение числа частиц I_q , испускаемых в телесный угол η с поверхности препарата, нанесенного на подложку, к числу частиц I_s , испускаемых в этот телесный угол с поверхности препарата без подложки, представляет собой истинный коэффициент обратного рассеяния.

$$q_{ист} = I_q / I_s \quad (3.42)$$

На практике пользуются не $q_{ист}$, а **коэффициентами обратного рассеяния q** , которые находят как отношение скорости счета препарата, нанесенного на подложку, к скорости счета того же препарата без подложки.

Условия, в которых проводят определение коэффициентов обратного рассеяния, несколько отличаясь в различных работах, сводятся в основном к следую-

щему. В качестве препаратов без подложки используют образцы, нанесенные на укрепленную на кольцо-держателе тонкую органическую пленку, для которой эффект обратного рассеяния ничтожно мал. Кольцо-держатель с препаратом располагают на определенном расстоянии от детектора излучения. Подложки из исследуемых материалов определенной толщины помещают под препаратом таким образом, чтобы зазор между препаратом и подложкой был минимальным (рис.3.14).

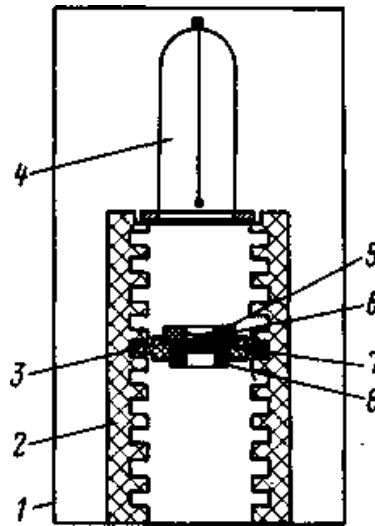


Рис. 3.14. Измерительное устройство, применяемое при исследовании обратного рассеяния: 1 — защитный домик; 2 — этажерка из плексигласа; 3 - выдвижная кассета; 4 - счетчик; 5 - кольцо-держатель для пленки; 6 — пленка с радиоактивным веществом; 7 - подложка-отражатель; 8 - прижимное кольцо для крепления подложки

Рассмотрим подробнее результаты работы в которой авторы использовали торцовый счетчик с диаметром окна 20 мм и толщиной слюды около 3 мг/см², помещенный в защитный домик из свинца, облицованный изнутри алюминием; геометрический коэффициент составлял примерно 0,03. В качестве β -излучателей были взяты ¹⁴C, ⁹⁵Nb, ³⁵S, ⁴⁵Ca, ⁶⁰Co, ¹⁸⁵W, ¹³⁴Cs, ²⁰⁴Tl, ²⁴Na, ⁹¹Y, ³²P, ⁹⁰Y.

На рис. 3.15, 3.16 показана зависимость коэффициента q от толщины подложек из разных материалов для β -излучения различной энергии. Обращает внимание довольно большой разброс значений q . (Возможно, такова вообще точность многих из подобных исследований, хотя в большинстве случаев исходные данные, позволяющие оценить рассеяние результатов эксперимента, не приводятся.) Тем не менее, на рисунках четко проявляются основные закономерности обратного рассеяния. **Коэффициент q возрастает с увеличением толщины подложки, достигая насыщения при определенных значениях $q_{подл}$.** Толщина подложек, при которой кривые обратного рассеяния выходят на насыщение, не должна превышать $0,5 R_{макс}$. В действительности она ниже: для высокоэнергетических β -излучателей $0,15 - 0,2 R_{макс}$, а для β -излучателей низкой энергии

$0,3-0,4 R_{\text{макс}}$. Чтобы заведомо быть уверенным в том, что достигается насыщение эффекта обратного рассеяния, следует выбирать толщину подложки не ниже $0,4 R_{\text{макс}}$

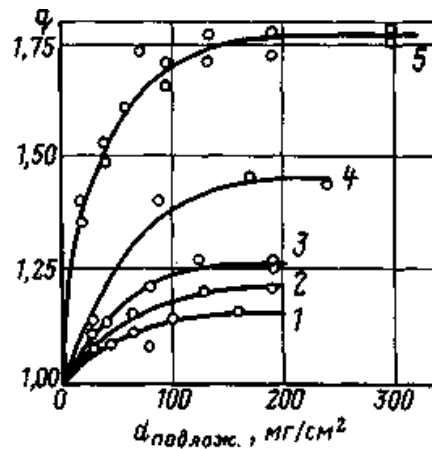


Рис. 3.15. Зависимость коэффициента обратного рассеяния β -излучения ^{32}P от толщины подложки из различных материалов:

1 - бумага; 2 - стекло; 3 - алюминий; 4 - латунь; 5 - свинец

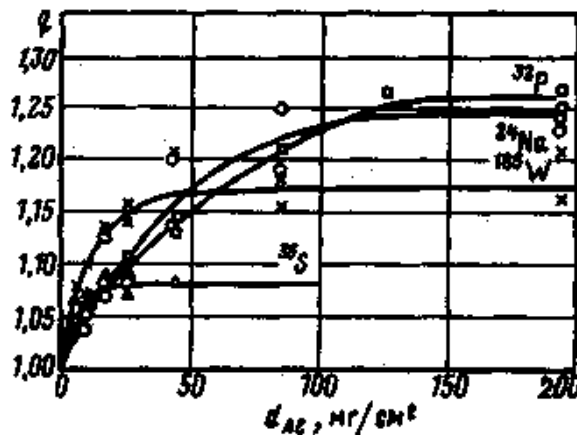


Рис. 3.16. Зависимость коэффициента q от толщины алюминиевой подложки для различных β -излучателей

Из рис. 3.16 можно видеть также, что при малой толщине подложки кривые обратного рассеяния для β -излучателей с низкими значениями максимальной энергии идут выше кривых для высокоэнергетических β -излучателей. Таким образом, используя тонкие подложки, можно добиться увеличения вклада низкоэнергетического компонента смеси радионуклидов в суммарную скорость счета, в то время как использование поглотителей приводит к противоположному результату.

Наконец, как следует из рис. 3.16, предельное значение q тем больше, чем выше максимальная энергия β -спектра. Однако значения q при толщине подложки, соответствующей насыщению обратного рассеяния, не зависят от максимальной энергии β -излучения при $E_{\text{макс}} > 0,6 \text{ МэВ}$ (рис. 3.17). Такой вид зависимости связывают с ослаблением обратно рассеянного излучения в слое воздуха между препаратом и счетчиком и в стенке счетчика.

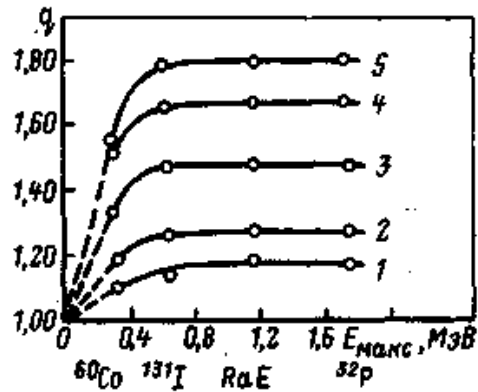


Рис. 3.17. Зависимость коэффициента обратного рассеяния от максимальной энергии β -спектра для подложек из различных материалов: 1 - картон; 2 - алюминий; 3 - медь; 4 - серебро (с палладиевым покрытием); 5 — платина

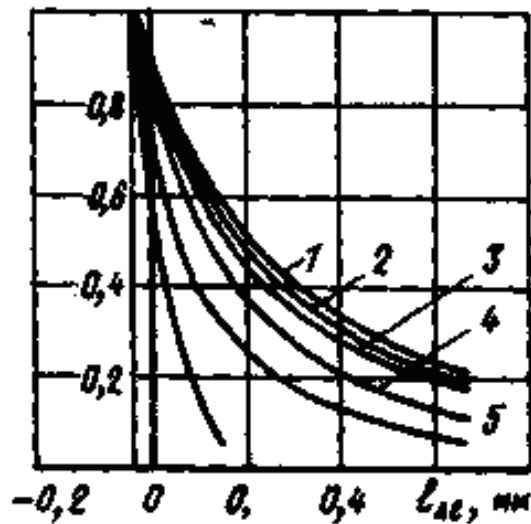


Рис. 3.19. Ослабление в алюминии (в линейном масштабе) первичного излучения ^{32}P (1) и обратно рассеянного излучения. Кривые 2-6 получены при следующих материалах подложек и значениях углов между направлением на счетчик и плоскостью подложки:

2 - свинец, 10° ; 3 - плексиглас, 10° ; 4 - свинец, 90° ; 5 - медь, 90° ; 6 - плексиглас, 90°

Было показано, что *имеется смещение спектра обратно рассеянного излучения в область более низкой энергии по сравнению с первичным излучением*. Этот факт продемонстрирован на рис. 3.19, где приводятся кривые ослабления β -излучения, отраженного от подложек из свинца, меди и плексигласа под различными углами. Из рисунка видно, что энергия излучения, рассеянного под малыми углами к подложке (кривые 2, 3), лишь ненамного ниже энергии первичного излучения. При рассеянии же под углами, близкими к 90° (кривые 4-6), происходит заметное снижение энергии β -частиц, тем более значительное, чем меньше атомный номер материала подложки. Обратно рассеянное излучение неізотропно. Для подложки из материалов с достаточно высокими Z значения коэффициентов q_a возрастают с увеличением угла α в тем большей степени, чем выше атомный номер вещества подложки (аналогичные зависимости были по-

лучены с препаратом ^{32}P). Для подложек из легких материалов характер кривых изменяется: в случае алюминия q_a практически не зависит от a , а для подложек из плексигласа наблюдалось снижение значений q_a с увеличением угла a . Таким образом, в конкретной работе необходимо учитывать сложный характер зависимости коэффициента обратного рассеяния от геометрических условий измерения и порядкового номера вещества подложки.

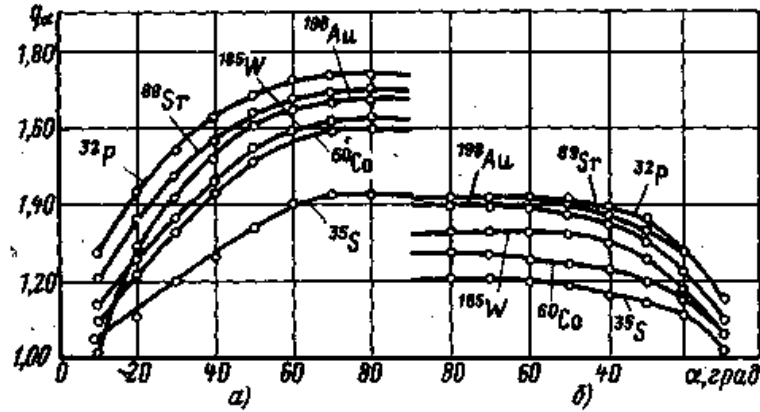


Рис. 3.20. Зависимость коэффициента обратного рассеяния q_a от угла a между направлением на счетчик и плоскостью подложек из свинца (а) и латуни (б) для разных радионуклидов

Позитроны при обратном рассеянии ведут себя так же, как электроны, хотя значения q для β^+ -частиц во всех случаях оказываются на 10—20%

Эффект обратного рассеяния уменьшается с увеличением толщины препарата. По аналогии с зависимостью, которая существует между обратным рассеянием и толщиной подложки, обратное рассеяние от подложки не должно сказываться, когда толщина препарата становится больше $0,2-0,4R_{\text{макс}}$. В этих случаях коэффициент обратного рассеяния можно не учитывать.

При измерениях β -радиоактивности тонких препаратов следует использовать либо толстые подложки, обеспечивающие насыщение обратного рассеяния ($d_{\text{подл}} > 0,4R_{\text{макс}}$), либо подложки одинаковой толщины, либо, наконец, очень тонкие подложки, изготовленные из веществ с малым атомным номером (для подобных подложек $q = 1$).

Если по условиям работы необходимо учитывать коэффициент обратного рассеяния, то следует определить его значение в конкретных условиях опыта. Например, если расстояние от препарата до стенок защитного домика меньше 30-40 мм, то необходимо принимать во внимание вклад, который вносит в эффект обратного рассеяния отражение β -излучения от стенок защитного домика. Чтобы его уменьшить, внутренние стенки домика покрывают легкими материалами, обычно плексигласом или алюминием. Однако и в этом случае повышение скорости счета вследствие отражения излучения от стенок может оказаться весьма существенным. Для оценки вклада отраженного излучения снимают вспомогательную кривую зависимости наблюдаемой скорости счета от материала стенок, помещая пластинки из различных материалов возле стенок домика. Экстраполируя полученную кривую до оси орди-

нат, получают результаты, приведенные к "нулевому" атомному номеру материала.

Зависимость коэффициента обратного рассеяния и энергии обратно рассеянного излучения от Z отражающего материала. Фундаментальное исследование зависимости коэффициента обратного рассеяния от Z вещества отражателя было выполнено в работе, где изучалось обратное рассеяние от 32 элементов и большого числа химических соединений. Автором была предложена эмпирическая формула для эффективного атомного номера химических соединений. Если соединение имеет состав $B_m C_n$, то

$$\bar{Z}_{BmCn} = (mZ_B A_B + nZ_C A_C) / M_{BmCn} \quad (3.43)$$

где Z_B и Z_C — атомные номера элементов В и С; A_B и A_C — их атомные массы; M_{BmCn} — молекулярная масса соединения. Это выражение можно переписать в виде

$$\bar{Z}_{BmCn} = Z_B f_B + Z_C f_C \quad (3.44)$$

где f_B и f_C — массовые доли элементов В и С в соединении

$$f_B = mA_B / M_{BmCn}, \quad f_C = nA_C / M_{BmCn} \quad (3.45)$$

Если эффективный атомный номер химического соединения совпадает с атомным номером некоторого элемента, то это соединение и элемент должны характеризоваться одинаковыми коэффициентами обратного рассеяния. Автор предположил, что монокристаллы NaF, KCl, RbBr и CsI, в каждом из которых галоген имеет атомный номер на единицу меньше, а щелочной металл — на единицу больше, чем соответствующий инертный газ, должны давать такие же эффекты обратного рассеяния, как Ne, Ar, Kr, Xe, если бы они находились в твердом или жидком состоянии.

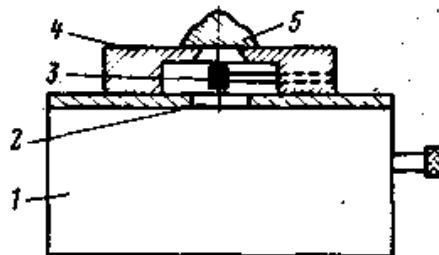


Рис. 3.21. Прибор для измерения обратного рассеяния β -частиц:

1 - метановый пропорциональный счетчик; 2 - окно счетчика; 3 - источник излучения; 4 - диафрагма; 5 - отражатель

В приборе (рис. 3.21) детектором излучения служил метановый пропорциональный счетчик с 5-см окном. Источник представлял собой небольшой алюминиевый цилиндр с каналом диаметром 0,5 мм, на дне которого находилась равновесная смесь $^{90}\text{Sr} + ^{90}\text{Y}$; фильтр соответствующей толщины полностью задерживал излучение стронция. Коллимированный источник β -частиц и площадку для образцов монтировали над счетчиком таким образом, чтобы можно было регистрировать только отраженное β -излучение.

Используя полученные с монокристаллами NaF, KCl, RbBr и CsI результаты в качестве реперных точек, автор нашел линейные уравнения вида

$$100(q - 1) = aZ + b \quad (3.46)$$

устанавливающие зависимость коэффициентов обратного рассеяния от Z отражателей для элементов III, IV и V периодов. Для II и VI периодов уравнения были получены обработкой методом наименьших квадратов экспериментальных данных по обратному рассеянию для элементов, лежащих внутри этих периодов. Соответствующие коэффициенты a и b приведены в табл. 3.7.

Таблица 3.7.

Коэффициенты уравнений (3.46)

| Период | Z | a | b |
|--------|-------|---------|---------|
| II | 2–10 | 1,2311 | -2,157 |
| III | 10–18 | 0,96731 | +0,476 |
| IV | 18–36 | 0,68582 | +5,556 |
| V | 36–54 | 0,34988 | +17,664 |
| VI | 54–86 | 0,26225 | +22,396 |

Весьма хорошее совпадение экспериментальных данных для элементов III, IV и V периодов с расчетными значениями $100(q-1)$, которые были определены из уравнений регрессии, полученных с помощью модельных соединений, подтверждает применимость формул для вычисления эффективного атомного номера химических соединений. Заметим также, что использование монокристаллов NaF, KCl, RbBr и CsI в качестве модельных объектов, имитирующих отражение инертными газами в твердом или жидком состоянии, позволило получить гораздо более точные линейные уравнения регрессии для элементов III, IV и V периодов, чем это было бы возможно путем обработки методом наименьших квадратов экспериментальных данных для элементов, лежащих внутри этих периодов.

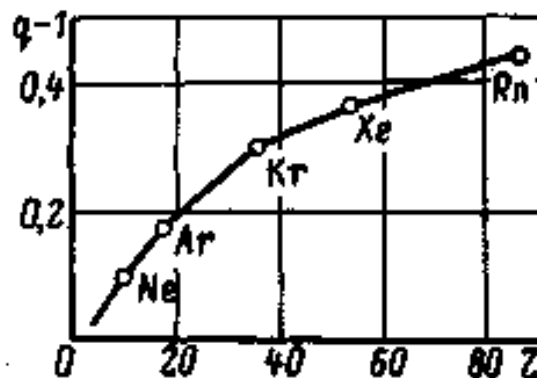


Рис. 3.22. Зависимость обратного рассеяния β -частиц от Z отражающего материала по данным работы

График изменения значений $q - 1$ в зависимости от Z отражателей показан на рис. 3.22. Отмечается что эти экспериментальные данные неплохо укладываются и в зависимость

$$(q - 1) = KZ^{0,67} \quad (3.47)$$

где K — постоянная, зависящая от энергии излучения и геометрии опыта.

В литературе приводятся другие виды зависимости $q - 1$ от атомного номера Z вещества отражателя:

$$\begin{aligned} (q - 1) &= 1 - \exp(-40/Z); \\ (q - 1) &= \kappa \sqrt{Z(Z + 1)A}; \\ (q - 1) &= 1 + \kappa'/Z - \sqrt{(1 + \kappa'/Z)^2 - 1} \end{aligned} \quad (3.48)$$

где A — атомная масса вещества; κ и κ' — константы.

Проводилось исследование спектров обратно рассеянного β -излучения с помощью магнитного спектрометра. В качестве источников β -частиц использовались ^{204}Tl , ^{32}P ; $^{90}\text{Sr} + ^{90}\text{Y}$. Показано (рис. 3.23), что максимальная энергия обратно рассеянного излучения тем ниже, чем меньше атомный номер вещества отражателя.

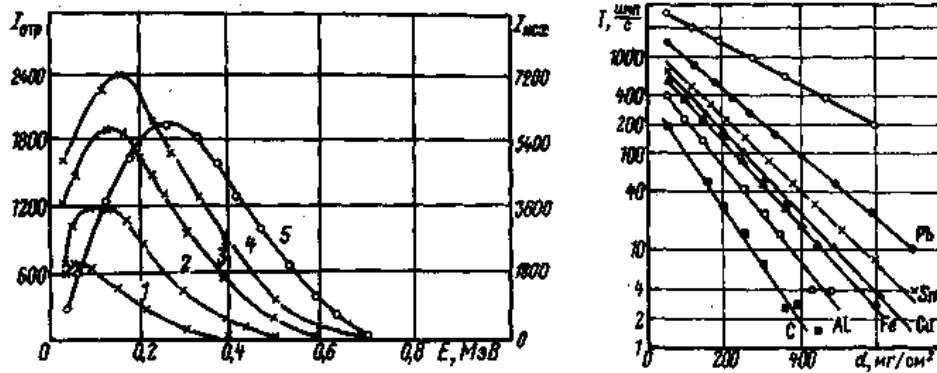


Рис. 3.23. Энергетические спектры исходного излучения ^{204}Tl (кривая 5) и излучения, отраженного от материалов с различным Z :

1-С ($Z=6$); 2- S ($Z=16$); 3- Zr ($Z=40$); 4- Pb ($Z=82$)

Рис. 3.24. Ослабление в алюминии прямого, β -излучения источника $^{90}\text{Sr} + ^{90}\text{Y}$ (верхняя кривая) и излучения, отраженного от различных материалов (Значения по оси ординат отложены в логарифмическом масштабе.)

Такой же результат был получен в работах, где максимальная энергия обратно рассеянного излучения определялась методом поглощения в алюминии. В качестве источников излучения использовались ^{90}Y и ^{106}Rh , находившиеся в равновесии с долгоживущими материнскими радионуклидами, а также ^{204}Tl . На рис.

3.24 показаны кривые ослабления прямого излучения ^{90}Y и обратно рассеянного излучения. Значения максимальной энергии обратно рассеянного излучения при использовании различных отражателей приведены в табл. 3.8. На основании полученных данных автором предложена следующая зависимость, связывающая максимальную энергию обратно рассеянного излучения (при однократном отражении) с энергией первичного излучения и атомным номером вещества отражателя:

$$(E_{\text{макс}})_p = 0,39Z^{0,144}E_{\text{макс}} \quad (3.49)$$

Таблица 3.8.

Максимальная энергия $(E_{\text{макс}})_\beta$ обратно рассеянных β -частиц источника ^{90}Y ($E_{\text{макс}} = 2.2 \text{ МэВ}$), МэВ

| Отражатель | Z | $(E_{\text{макс}})_p$ |
|------------|----|-----------------------|
| Свинец | 82 | 1,60 |
| Олово | 50 | 1,48 |
| Медь | 29 | 1,42 |
| Железо | 26 | 1,38 |
| Алюминий | 13 | 1,26 |
| Графит | 6 | 1,10 |

Самоослабление β -излучения в слое радиоактивного препарата Ослабление излучения в веществе радиоактивного препарата является сложной комбинацией эффектов саморассеяния и самопоглощения. Коэффициент самоослабления определяется как отношение числа частиц I_s , испускаемых с поверхности препарата в телесный угол η к числу частиц I_η , испускаемых в слое вещества препарата а этот телесный угол, т.е.

$$S = I_s/I_\eta \quad (3.50)$$

Коэффициент самоослабления зависит от толщины препарата, эффективного атомного номера материала, из которого изготовлен препарат, максимальной энергии испускаемых препаратом β -частиц и геометрических условий измерений. Под эффективным атомным номером при самоослаблении подразумевается среднее квадратическое из атомных номеров всех n атомов, входящих в состав молекул измеряемого соединения:

$$Z_{\text{эфф}} = \sqrt{\sum Z_i^2 / n} \quad (3.51)$$

Точный вид зависимости коэффициента S от указанных факторов окончательно не установлен, поэтому при измерении абсолютной активности толстых образцов поправка на самоослабление должна быть определена экспериментально

для каждого изучаемого радионуклида в веществе того соединения, в котором он поступает на измерение.

Расчетным образом *оценочное* выражение для коэффициента самоослабления можно найти, если исходить из экспоненциального закона ослабления β -излучения (который выполняется лишь весьма приближенно). Рассмотрим слой образца толщиной r (г/см²) и площадью s , с поверхности которого в телесный угол η испускается I_S частиц. Если на этот слой наложить бесконечно тонкий слой dr того же вещества, то число частиц, испускаемых с поверхности в телесный угол η , возрастает на величину dI_S , равную

$$dI_S = A_m s dr - \mu I_S dr \quad (3.52)$$

где A_m - удельная активность (в единицах регистрируемой активности), а μ - массовый коэффициент ослабления излучения в материале препарата. Общее решение полученного линейного дифференциального уравнения может быть представлено в виде

$$I_S = \exp(-\mu r) \left[\frac{A_m s}{\mu} \exp(\mu r) + C \right] \quad (3.53)$$

Постоянную интегрирования находим из начальных условий: при $r=0$ $I_S=0$, тогда откуда $C = -A_m s/\mu$. Таким образом,

$$I_S = \exp(-\mu r) \left[\frac{A_m s}{\mu} (\exp(\mu r) - 1) \right]$$

или

$$I_S = \frac{A_m s}{\mu} [1 - \exp(-\mu r)] \quad (3.54)$$

С другой стороны, число частиц I_η испускаемых в объеме вещества в телесный угол η , очевидно, равно:

$$I_\eta = A_m r s \quad (3.55)$$

так что окончательно имеем:

$$S = \frac{I_S}{I_\eta} = \frac{1 - \exp(-\mu r)}{\mu r} \quad (3.56)$$

Точность определения коэффициента самоослабления по формуле (3.56) невелика, и ею следует пользоваться лишь для приближенных оценок. В грубом приближении коэффициент μ можно принимать равным $5/R_{\text{макс}}$

Формула (3.56) неприменима для слоев, толщина которых превышает толщину слоя насыщения. Однако легко показать, что предельное значение скорости счета I_∞ есть мера удельной активности образца. Действительно, из выражения (3.54) следует, что при $r \rightarrow \infty$

$$I_\infty = A_m s / \mu$$

Если I_1 и I_2 – скорости счета двух препаратов "бесконечной" толщины и одинаковой площади, содержащих один и тот же радионуклид и имеющих одинаковый химический состав, то отношение I_1/I_2 характеризует соотношение удельных активностей сравниваемых препаратов:

$$A_{m1}/A_{m2}=I_1/I_2 \quad (3.57)$$

Существуют различные экспериментальные приемы определения поправки на самоослабление. Если требуется определить активность нескольких препаратов одинаковой толщины, содержащих различное количество радионуклида, то изготавливают специальный образец, подмешивая к неактивному слою заданной толщины небольшое количество радиоактивного вещества, и измеряют скорость счета I_S полученного препарата. Зная абсолютную активность A добавленного нуклида, находят $I_S=\eta A$ (предполагается, что эффект обратного рассеяния пренебрежимо мал или учтен введением соответствующей поправки). Если A не известно, то определяют I_S экспериментально, измеряя в заданных условиях регистрируемую активность установленного объема исходного радиоактивного раствора "без носителя". Затем рассчитывают коэффициент самоослабления по формуле (3.50).

Более общая процедура заключается в снятии кривой самоослабления, с помощью которой можно определять коэффициент S для препаратов любой толщины. Используемые при этом различные экспериментальные приемы описаны в последующих разделах.

Следует отметить, что поправку на самоослабление можно не учитывать, если толщина препарата не превышает 20 мкг/см^2 для радионуклидов с низкой энергией β -излучения (^{14}C) и 1 мг/см^2 для радионуклидов с высокой энергией β -излучения (^{32}P).

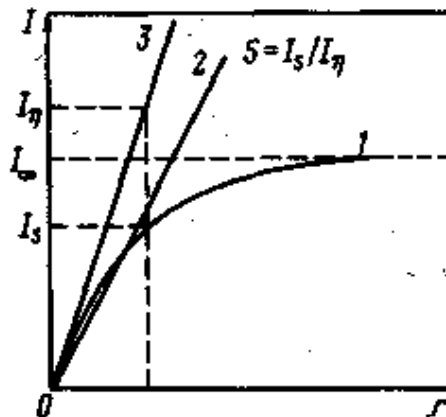


Рис. 3.25. Кривая самоослабления при постоянной удельной активности (r -толщина препаратов)

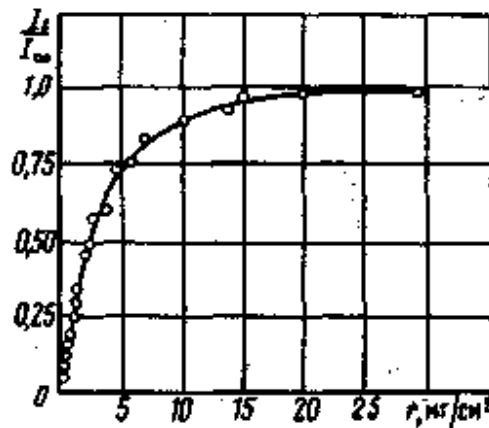


Рис. 3.26. Кривая самоослабления для препаратов BaCO_3 (^{14}C) с постоянной удельной активностью

Кривые самоослабления для препаратов с одинаковой удельной активностью. Пусть массовая удельная активность используемых препаратов (число распадов в единицу времени на единицу массы вещества) постоянна, а их толщина r изменяется. Например, приготовлено несколько образцов, полученных осаждением из кратных объемов радиоактивного раствора, причем все образцы имеют одинаковую площадь и радиоактивные атомы равномерно распределены в веществе каждого препарата. Очевидно, что при нулевой толщине препарата, т.е. при отсутствии радиоактивного вещества, скорость счета также равна нулю ($I = 0$), а при некоторой предельной толщине препарата, отвечающей полному поглощению β -частиц с нижних слоев, скорость счета достигает насыщения ($I = I_{\infty}$). Этому случаю соответствует кривая 1 на рис. 3.25.

Число частиц, испускаемых в слое вещества препарата в телесный угол η , выражается прямой 2, проведенной из начала координат. Из-за саморассеяния излучения при малой толщине препаратов кривая 1 на начальном участке идет выше прямой 2. Точно определить наклон прямой 2 трудно. На практике ее заменяют касательной 3, проходящей через начало координат.

На начальном участке кривая самоослабления сливается с касательной, следовательно, для достаточно тонких препаратов потери излучения в слое радиоактивного вещества практически отсутствуют. Для образцов, толщина которых меньше слоя насыщения, но уже обуславливает поглощение β -излучения, поправочный коэффициент S определяется как отношение ординат касательной и кривой самоослабления при некоторой определенной толщине слоя препарата.

На рис. 3.26 показана кривая самоослабления для образцов BaCO_3 (использовали торцовый счетчик со слюдяным окном толщиной 3 мг/см^2 и диаметром 60 мм ; препараты, нанесенные на алюминиевые диски, размещали в двух миллиметрах от окна счетчика).

Обычно рекомендуется вести работу с достаточно тонкими образцами, для которых можно пренебречь эффектом самоослабления, или с "бесконечно толстыми" образцами (слой насыщения), для которых регистрируемая активность пропорциональна удельной активности. Минимальная толщина образца, отве-

чающая слою насыщения, не превышает максимального пробега β -излучения в материале препарата, а для большинства практических целей, благодаря весьма незначительному влиянию нижних слоев и дополнительному поглощению в окошке счетчика, достаточна толщина $0,75R_{\text{макс}}$.

Иногда необходимо привести скорость счета препарата толщиной r к скорости счета "бесконечно толстого" слоя. На основании выражений (3.54) и (3.56) имеем:

$$I = I_{\infty}[1 - \exp(-\mu r)] \quad (3.58)$$

Чтобы получить более точные значения скорости счета, приведенной к слою насыщения, необходимо пользоваться градуировочной кривой, построенной для серии препаратов, приготовленных из того вещества, в форме которого радионуклид поступает на измерение в данной работе.

Кривые самоослабления для препаратов с одинаковыми значениями общей активности. Другой метод определения коэффициента самоослабления — метод неактивной примеси — предполагает постоянство общей активности измеряемых образцов при различной их толщине. Массовая удельная активность препаратов в этом случае изменяется. Например, изготовлена серия препаратов осаждением из растворов с одинаковым количеством радионуклида, но различным количеством носителя. Результаты измерения этих образцов изображают в виде графика с толщиной образца по оси абсцисс и скоростью счета по оси ординат. Скорость счета бесконечно тонкого источника находят экстраполяцией кривой самоослабления к нулевой толщине препарата. Коэффициент самоослабления определяют как отношение скорости счета препарата данной толщины к скорости счета бесконечно тонкого образца (рис. 3.26). Метод дает точные результаты, если исходный радионуклид точно высокую удельную активность, что позволяет приготовить первый препарат бесконечно тонким.

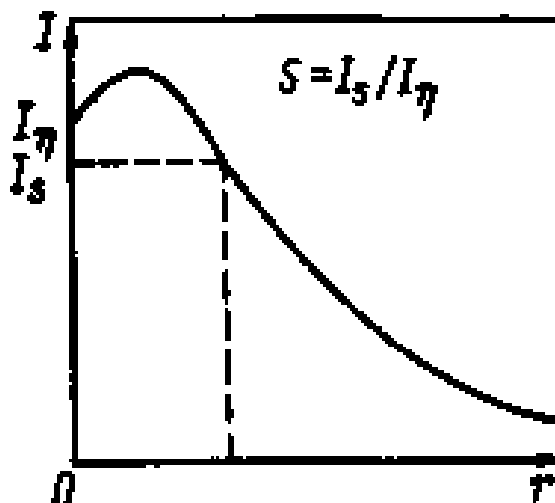


Рис. 3.26. Кривая самоослабления при постоянной общей активности образцов (r - толщина препаратов)

Максимум кривой при толщине препарата, равной 0,03 – 0,1 максимального пробега β -частиц используемого радионуклида, объясняется рассеянием β -частиц в материале самого препарата. В результате рассеяния изотропность углового распределения β -частиц нарушается, увеличивается число частиц, вылетающих под большим углом к плоскости препарата и попадающих в счетчик. При небольшой относительной толщине препарата увеличение скорости счета, обусловленное саморассеянием, может превысить эффект самопоглощения и привести к возрастанию регистрируемой активности. По достижении максимума скорость счета убывает с увеличением количества носителя примерно по экспоненциальному закону. При увеличении геометрического коэффициента максимум на экспериментальной кривой сглаживается и при значениях η , близких к 0,5, исчезает.

Получим выражение для приближенного расчета коэффициента самоослабления S при разбавлении радиоактивного образца неактивной примесью. Рассмотрим образец площадью s и толщиной r_0 (г/см²) с удельной активностью (в единицах регистрируемой активности) A_{m0} . Пусть этот образец разбавляется неактивным материалом таким образом, что площадь его не изменяется, а толщина и удельная активность принимают соответственно значения r и A_m (рис. 3.27). Очевидно, что при этом

$$\begin{aligned} A_{m0}r_0s &= A_m r s = I_\eta \\ A_{m0} / A_m &= r / r_0 = K \end{aligned} \quad (3.59)$$

K представляет собой кратность разбавления.

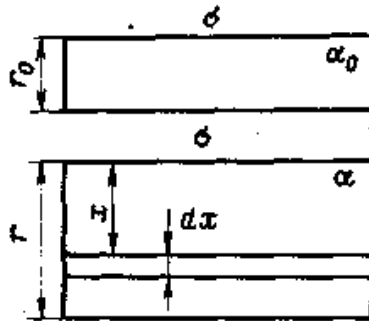


Рис. 3.27. К расчету коэффициента ослабления при постоянной общей активности образцов

Определим число частиц I_S , испускаемых с поверхности разбавленного образца, которое обусловлено элементом толщины dx : $dI_S = A_m s dx \cdot \exp(-\mu x)$

Интегрируя это уравнение, находим:

$$I_S = A_m s \int_0^r \exp(-\mu x) dx = \frac{A_m s}{\mu} [1 - \exp(-\mu r)] \quad (3.60)$$

Подставляя сюда $A_m = A_{m0}r_0 / r$ и вводя кратность разбавления K , получаем:

$$I_S = \frac{A_{m0} r_0 S}{\mu r} [1 - \exp(-\mu r)];$$

$$I_S = \frac{A_{m0} S}{\mu K} [1 - \exp(-\mu r)]$$
(3.61)

Последнее соотношение позволяет оценить значение I_S на основании исходной удельной активности и известной кратности разбавления.

Из зависимости (3.61) с учетом (3.59) следует выражение для коэффициента самоослабления, совпадающее с (3.56). Это естественно, так как различные экспериментальные способы определения S должны в принципе приводить к одинаковым значениям. Нужно, однако, подчеркнуть, что область применения формулы (3.56) ограничивается большими значениями η .

Получение кривых самоослабления методом "инертных слоев". Приготовление однородных по толщине радиоактивных препаратов правильной формы с равномерным распределением радиоактивного вещества в массе образца — сложная и трудоемкая задача. Поэтому понятно стремление экспериментаторов найти такие методы построения кривых самоослабления, которые не были бы связаны с необходимостью приготовления радиоактивных препаратов различной толщины. Рассмотрим один из таких методов - так называемый метод инертных слоев. Этот метод заключается в том, что складывают определенное количество тонких листков неактивного материала (фольги, бумаги и т.п.) и между различными слоями помещают бесконечно тонкий препарат, нанесенный на органическую пленку. Скорость счета препарата измеряется как функция глубины расположения препарата между листиками фольги или бумаги. В этом случае экспериментальные данные могут быть представлены в виде графика, где по оси абсцисс отложена толщина слоя вещества перед препаратом (между препаратом и счетчиком), а по оси ординат — отношение измеренной скорости счета к скорости счета тонкого препарата (рис. 3.28). Различные кривые относятся к различной толщине стопок фольги, определяемой по абсциссе конечной точки каждой кривой.

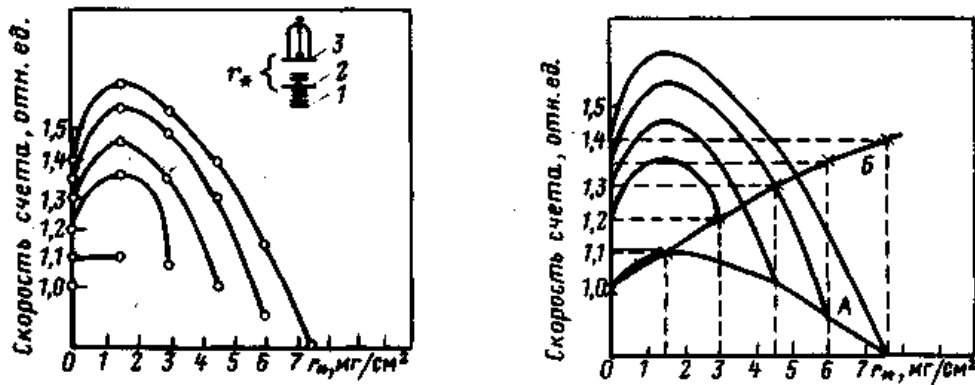


Рис. 3.28. Зависимость видимой активности тонкого препарата от положения среди слоев инертного материала:

1 - тонкая фольга; 2 - препарат; 3 - счетчик. (По оси абсцисс отложена толщина слоя вещества перед тонким препаратом, $\text{мг}/\text{см}^2$, а по оси ординат - отношение наблюдаемой скорости счета к скорости счета тонкого препарата.)

Рис. 3.29. Построение графика зависимости скорости счета от толщины поглотителя (A) и отражателя (B) (По осям отложены те же величины, что на рис. 3.28.)

Из рис. 3.28 видно, что небольшой слой вещества, помещенного около тонкого препарата, увеличивает наблюдаемую скорость счета независимо от того, помещен ли слой вещества за препаратом и является отражателем или он расположен перед препаратом и служит поглотителем.

Соединяя конечные точки кривых, полученных для различного числа инертных слоев, можно построить кривую, характеризующую зависимость скорости счета от толщины поглотителя (рис. 3.29, кривая A). Как и следовало ожидать, введение поглотителей сначала увеличивает регистрируемую скорость счета, и лишь затем наблюдается ее снижение. Кривая B, определяемая точками пересечения взаимно перпендикулярных прямых, проводимых через начальные и конечные точки кривых, полученных для различного числа инертных слоев, характеризует наблюдаемую скорость счета как функцию толщины отражателя. С ростом толщины отражающего слоя происходит увеличение регистрируемой скорости счета, постепенно доходящее до насыщения. Комбинация указанных процессов дает в итоге суммарный эффект самоослабления.

Метод инертных слоев может быть применен в несколько иной интерпретации. Берется n листиков фильтровальной бумаги, один из которых пропитан радиоактивным раствором. Толщина стопки бумаги должна быть достаточной для поглощения излучения препарата, если он находится в самом низу. Скорость счета препарата по-прежнему измеряется как функция глубины расположения препарата между слоями неактивной бумаги. Если сложить все n значений регистрируемой скорости счета, то полученное значение будет характеризовать скорость счета препарата, состоящего как раз из n активных слоев; сумма $n-1$ первых значений регистрируемой скорости счета дает скорость счета препарата, состоящего из $n-1$ активных слоев, и т.д. В случае необходимости резуль-

таты могут быть исправлены на обратное рассеяние от бумажной подложки. Нанося на график указанные суммы в зависимости от толщины образца, равной числу просуммированных листиков бумаги, получают кривую самоослабления, подобную изображенной на рис. 3.25.

Ниже приводятся данные по самоослаблению β -излучения при измерении образцов в проточных метановых 4 π -счетчиках (табл. 3.9). В этом случае изотропность излучения, обусловленная саморассеянием, не сказывается на результатах измерений, и доля излучения, испускаемого поверхностью препаратов, монотонно убывает с их толщиной. В цитируемой работе различные радионуклиды поступали на измерение в форме различных соединений; специальная проверка, проведенная для ^{35}S и ^{32}P , показала, что применение легкого или тяжелого осадков в пределах погрешности измерений не приводит к изменению степени самоослабления.

Таблица 3.9.

Самоослабление β -излучения различной максимальной энергии в 4 π -счетчике

| Изотоп-препарат | Излучение | Максимальная энергия, МэВ | Наибольшая толщина, см | Среднее прошедшего излучения при толщине препарата r , мг/см ² | | | | | | |
|-----------------|-----------------|---------------------------|---|---|-------|-------|-------|-------|-------|-------|
| | | | | 0 | 1 | 2 | 4 | 6 | 8 | 10 |
| ^{35}S | β | 0,143 | $\text{BaSO}_4; \text{PbSO}_4$ | 1,000 | 0,760 | 0,637 | 0,500 | 0,414 | 0,344 | 0,288 |
| ^{32}P | β | 0,273 | $\text{CaSO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ | 1,000 | 0,842 | 0,755 | 0,643 | 0,579 | 0,522 | 0,465 |
| ^{32}P | β, γ | 0,37 | CaSO_4 | 1,000 | 0,875 | 0,796 | 0,710 | 0,652 | 0,608 | 0,572 |
| ^{32}P | β, γ | 0,44 | TiCl_3 | 1,000 | 0,936 | 0,892 | 0,837 | 0,788 | 0,739 | — |
| ^{32}P | β, γ | 0,33 | Ti_2SO_4 | 1,000 | 0,970 | 0,945 | 0,904 | 0,867 | 0,836 | 0,808 |
| ^{32}P | β | 1,46 | SrSO_4 | 1,000 | 0,984 | 0,972 | 0,954 | 0,939 | 0,925 | 0,913 |
| ^{32}P | β | 1,71 | $\text{Ni}_2\text{P}_2\text{O}_7$ | 1,000 | 0,988 | 0,978 | 0,965 | 0,956 | 0,946 | 0,938 |
| ^{32}P | β | — | BaSO_4 | — | 0,988 | 0,978 | 0,963 | 0,952 | 0,945 | 0,937 |
| ^{32}P | β | 2,31 | $\text{Y}_2(\text{C}_2\text{O}_4)_3$ | 5,000 | 0,995 | 0,991 | 0,984 | 0,978 | 0,973 | 0,968 |

Поэтому формула, связывающая измеряемую среднюю скорость счета импульсов счетчика (с поправками на фон и на просчеты из-за разрешающего времени установки) с активностью нуклида в измеряемом источнике, принимает более сложный вид:

$$A = \left(\frac{I_{\text{изм}}}{1 - I_{\text{изм}} \tau} - I_{\phi} \right) \cdot \frac{1}{\eta \cdot S \cdot q \cdot k \cdot p \cdot \varepsilon} \quad (3.62)$$

где η – поправка на геометрию измерения (относительный телесный угол); S – поправка на поглощение и рассеяние излучения в источнике («самопоглощение» и «саморассеяние»); q – поправка на обратное рассеяние от подложки источника; k – поправка на поглощение излучения, на пути между источником и счетчиком и поглощение излучения в окне счетчика; p – поправка на схему распада; ε – поправка на эффективность регистрации детектором попавших в него частиц.

Еще раз рассмотрим поправочные множители и способы определения и уменьшения их числовых значений при измерении активности β -излучающих нуклидов.

Поглощение излучения на пути между источником и счетчиком, в окне счетчика, а также в веществе источника определяют в результате измерения скорости

счета счетчика в зависимости от толщины поглотителей, помещаемых между диафрагмой и окном счетчика, с последующей экстраполяцией полученной кривой поглощения к нулевой толщине поглотителя, имея в виду суммарную толщину слоя воздуха, окна счетчика и эффективную толщину активного слоя источника. При точных измерениях стараются по возможности уменьшить толщину окна счетчика и на пути от источника до счетчика создать вакуум; для этого источник и счетчик вместе с набором поглотителей помещают в герметичную камеру. Внутренние стенки и детали прибора изготавливают из легких материалов или покрывают материалом с малым атомным номером.

Поправочный множитель q зависит от энергии частиц, от материала и толщины подложки, а также от степени ее шероховатости. Кроме того, угловое распределение отраженных частиц не изотропно и, следовательно, поправочный множитель зависит также от геометрических условий измерения. Коэффициенты отражения β -частиц исследованы хорошо для очень малых телесных углов и для угла 2π . Коэффициент отражения достигает 1,2—1,5 и определяется по таблицам или кривым; погрешность его определения довольно велика – порядка 8-10%.

Поправка на «самопоглощение» и «саморассеяние» в источнике относится к наиболее трудно определяемым. Ее значение зависит от телесного угла, от энергии частиц, от эффективного атомного номера источника и подложки, от структуры и толщины активного слоя и от поглощения излучения на пути между источником и счетчиком. Так как «самопоглощение» и «саморассеяние» влияют на измеряемую скорость счета в противоположных направлениях, то в зависимости от соотношения этих эффектов их совместное действие может либо уменьшить, либо увеличить скорость счета. Так, при малых телесных углах по мере увеличения толщины активного слоя при неизменной активности нуклида в источнике наблюдается сначала увеличение скорости счета, а затем ее уменьшение. Поправки на «самопоглощение» и «саморассеяние» обычно определяют экспериментально, изготовив несколько источников с различной толщиной активного слоя; измеряют скорости счета и затем экстраполируют полученную зависимость скорости счета от толщины активного слоя к «нулевой» толщине. Однако вследствие немонотонного характера кривой в области малых толщин активного слоя экстраполяция иногда может быть недостаточно надежной и привести к ошибке до 20 % .

При измерении активности нуклидов со сложным распадом (распад по нескольким ветвям, распад с испусканием γ -излучения, наличие внутренней конверсии и т. д.) формула, связывающая измеряемую скорость счета с активностью нуклида, принимает значительно более сложный вид; в ней появляются дополнительные члены и поправочные множители, зависящие от схемы распада измеряемого нуклида.

Наличие большого числа поправочных множителей, требующих для своего определения специальных исследований и измерений, значительно снижает точность результатов измерений активности β -нуклидов методом опре-

деленного телесного угла. В результате анализа всех факторов, влияющих на точность измерений данным методом, *была оценена погрешность результата равная 5–10%*; лишь в отдельных благоприятных случаях она может снижаться до 3%. В настоящее время такой уровень точности не является удовлетворительным, вследствие чего этот метод уже не используют в метрологических лабораториях для измерения активности β -излучающих нуклидов. Это подтверждается отчетами МБМВ о результатах международных сличений национальных эталонов единицы активности β -излучающих нуклидов.

Значительно более высокую точность метод определенного телесного угла дает при измерении излучений, которые сравнительно слабо рассеиваются и сильно поглощаются. К таким видам излучений относятся: α -излучение с энергией несколько мегаэлектронвольт и фотонное излучение с энергиями в диапазоне от 1 до 80 кэВ. В качестве детекторов α -частиц при этом могут быть использованы: пропорциональные счетчики, сцинтилляторы из ZnS, тонкие кристаллы из NaI или CsI, полупроводниковые детекторы. Наиболее подходящим детектором фотонов с энергией 3–15 кэВ является пропорциональный счетчик с тонким окном, наполненный смесью аргона или ксенона с метаном: при энергии фотонов до 80 кэВ используют кристаллы NaI и полупроводниковые детекторы. Фотоны более высоких энергии могут частично проникать через диафрагму и поэтому данным методом не могут быть измерены с высокой точностью.

При измерениях с применением α -счетчика с малым телесным углом (с пластиковым сцинтиллятором толщиной 0,05 мм) и пропорционального счетчика фотонов с тонким окном, наполненного смесью аргона (ксенона) с метаном общая погрешность результата измерений активности составляет около 0,1 % при использовании α -счетчика и около 1% при использовании фотонного счетчика.

3.1.2. Метод 4- π -счета

Данный метод заключается в измерении числа заряженных частиц или фотонов, испускаемых источником в единицу времени в полном телесном угле 4π . Это измерение осуществляют с помощью так называемого 4 π -счетчика, т. е. счетчика, охватывающего излучение источника в телесном угле 4π .

4 π -счетчики могут быть газоразрядными, наполненными самогасящей смесью газов, работающими в режиме Гейгера — Мюллера или пропорциональном, либо сцинтилляционными — с использованием твердого или жидкого сцинтилляторов.

Газоразрядный 4 π -счетчик является едва ли не самым распространенным прибором для измерения активности нуклидов, и развитию и исследованию метода 4 π -счета посвящено большое число работ.

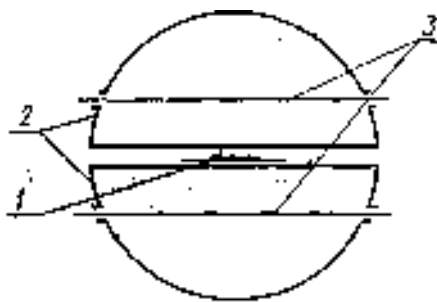


Рис. 3.30. Схема газоразрядного счетчика с телесным углом 4π :

1 – источник на подложке; 2 – половины 4π -счетчика (2π -счетчики); 3 – нити

Конструкции газоразрядных 4π -счетчиков весьма разнообразны, но в принципе каждый счетчик состоит из двух одинаковых счетчиков с телесным углом 2π (в виде полусфер, полуцилиндров или цилиндров), обращенных открытыми торцами друг к другу и; разделенных тонкой перегородкой, на которой помещают измеряемый источник. Каждая половина 4π -счетчика имеет отдельный анод в виде прямой или петлеобразной нити. При работе 4π -счетчика оба анода соединяются параллельно. Схема газоразрядного 4π -счетчика представлена на рис. 3.30.

Каждая частица, испускаемая источником и не поглощенная подложкой или активным слоем, попадает в одну из половин счетчика и сосчитывается. Если две частицы попадут в счетчик в пределах его разрешающего времени, они дадут один импульс, т. е. будут сосчитаны как одна частица. Поэтому рассеяние частиц в счетчике не сказывается на измеряемой скорости счета, даже в том случае, когда одна частица в результате рассеяния переходит из одной половины 4π -счетчика в другую. Благодаря этому отпадает необходимость вводить поправки на γ -излучение, сопровождающее распад, на аннигиляционное излучение при позитронном распаде и на электроны конверсии. Отпадает и необходимость учета поглощения частиц на пути от источника до счетчика. Наконец исключается надобность в расчете геометрического множителя, поскольку для 4π -счетчика он равен 4π . Таким образом, формула, связывающая скорость счета 4π -счетчика с активностью нуклида в измеряемом источнике, принимает общий вид

$$A = \left(\frac{I_{изм}}{1 - I_{изм} \tau} - I_{\phi} \right) \frac{1}{S \cdot K_q}, \quad (3.63)$$

где S учитывает поглощение частиц в источнике – «самопоглощение», K_q – поглощение частиц в подложке источника.

Сравнение формул (3.62) и (3.63) показывает, что последняя формула содержит значительно меньшее число поправочных множителей. Кроме того, результат измерения с помощью 4π -счетчика не зависит от схемы распада измеряемого нуклида, за исключением случаев, когда нуклид распадается путем электронного захвата.

4π-счетчик, работающий в гейгеровском режиме, отличается высокой чувствительностью, так как любая частица, создающая хотя бы одну пару ионов, вызывает возникновение разряда в счетчике. Благодаря большому коэффициенту газового усиления (10^8 — 10^{11}) счетчик Гейгера — Мюллера дает импульсы амплитудой до 1 в и выше, причем амплитуда не зависит от начальной ионизации. Длина плато счетной характеристики составляет от 100 в до нескольких сотен вольт с наклоном 0,02—0,05% на 1 в. **Недостатком счетчика Гейгера — Мюллера является очень большое «мертвое» время (около 500 мксек),** определяемое временем перемещения положительных ионов от нити к катоду; обычно для уменьшения наклона плато счетной характеристики прибегают к использованию в счетном радиоэлектронном устройстве постоянного «мертвого» времени, превышающего собственное «мертвое» время счетчика. Большое «мертвое» время ограничивает верхний предел активностей, измеряемых с помощью счетчика Гейгера — Мюллера, значением 100—200 расп./сек.

Ряд недостатков, присущих счетчикам Гейгера — Мюллера, отсутствует у счетчиков, работающих в пропорциональном режиме, или **пропорциональных счетчиков**. Они работают при напряжениях, лежащих ниже гейгеровской области, когда еще сохраняется пропорциональность между начальной ионизацией и амплитудой импульса. Процесс газового усиления в пропорциональном счетчике начинается так же, как в счетчике Гейгера — Мюллера, но прекращается он после того, как все электроны первоначальной лавины достигнут анода, тогда как в счетчике Гейгера—Мюллера разряд прекращается лишь после образования вокруг нити большого числа положительных ионов, экранирующих нить. Поэтому **«мертвое» время пропорционального счетчика значительно меньше, чем у счетчика Гейгера — Мюллера, и составляет лишь 1 мксек.** Благодаря этому появляется возможность значительно увеличить загрузку счетчика и тем самым повысить верхний предел измерения активности до 10^5 — 10^6 расп./сек. Вместе с тем вследствие меньшего, чем у счетчиков Гейгера — Мюллера, газового усиления (10^4 — 10^5) амплитуда импульсов у пропорционального счетчика соответственно ниже, из-за чего возникает необходимость дополнительно усиливать импульсы в 10^3 — 10^4 раз с помощью высококачественных электронных линейных усилителей.

Таким образом, и счетчики Гейгера — Мюллера, и пропорциональные счетчики имеют свои достоинства и свои недостатки. Поэтому в течение длительного периода в метрологических лабораториях использовали и те, и другие примерно в одинаковой мере. В дальнейшем, с повышением требований к точности измерений, было замечено, что счетчики Гейгера — Мюллера дают несколько завышенные (на 0,8—1 %) результаты измерений по сравнению с пропорциональными счетчиками, причем этот эффект почти не зависит от максимальной энергии β-излучения измеряемого нуклида и, по-видимому, является свойством самого счетчика. Этот эффект объяснили наличием ложных импульсов в счетчиках Гейгера — Мюллера. Поэтому при проведении точных абсолютных измерений активности нуклидов пропорциональные счетчики предпочтительнее.

Это подтверждается практикой национальных и международных метрологических лабораторий: если в международных сличениях растворов ^{32}P в 1961 г. с участием 16 лабораторий счетчики Гейгера — Мюллера применяли две лаборатории, то при проведении международных сличений, растворов $^{90}\text{Sr}+^{90}\text{Y}$ в 1964 г. все 24 лаборатории применяли только 4π-счетчики, работавшие в пропорциональном режиме.

Основным источником погрешности результата измерений активности α- и β-излучающих нуклидов с помощью газоразрядного 4π-счетчика является неточность определения поглощения частиц в подложке источника и в его активном слое. Оба эти явления в значительной степени зависят от энергии излучения измеряемых нуклидов и от способа приготовления источников, а также от материала и толщины подложки. Для уменьшения поправок на поглощение излучения подложки следует изготавливать из тонких органических пленок, а активный слой делать насколько возможно более тонким и равномерным. Поэтому метод 4π-счета применяется главным образом для измерения удельной активности нуклидов в растворах и для измерения активности нуклидов в источниках на подложках из тонких пленок.

В табл. 3.10 приведены значения погрешностей определения основных величин, по которым вычисляют активность нуклидов, измеряемую с помощью пропорциональных 4π-счетчиков; эти значения получены в лабораториях, участвовавших в международных сличениях растворов двух радионуклидов: ^{241}Am (α-излучатель), 1963 г. и $^{90}\text{Sr}+^{90}\text{Y}$ (β-излучатель), 1964 г.

Таблица 3.10

Значения погрешностей определения основных величин при измерении активности нуклидов с помощью пропорциональных 4π-счетчиков

| Измеряемая величина | Погрешность измерения, % | |
|---|--------------------------|----------------------------------|
| | ^{241}Am | $^{90}\text{Sr} + ^{90}\text{Y}$ |
| Масса раствора, нанесенного на подложку | 0,01—0,2 | 0,02—0,15 |
| Число импульсов | 0,03—0,3 | 0,05—0,25 |
| Время измерения | 0,1 | 0,005—0,15 |
| Фон счетчика | 0,0005—0,2 | 0,001—0,06 |
| «Мертвое» время | 0,01—0,04 | 0,005—0,3 |
| Самопоглощение | 0,01—0,2 | 0,03—0,7 |
| Поглощение в подложке | 0,01 | 0,005—0,2 |

Общая погрешность результатов измерений активности нуклидов с помощью пропорционального 4π-счетчика, оцениваемая самими участниками международных сличений, меняется от 0,1 до 1%. Однако разброс результатов, получен-

ных всеми участниками международных сличений, показывает, что в настоящее время средняя погрешность результата измерений активности α - и β -излучающих нуклидов с помощью 4π -счетчиков в лучших метрологических лабораториях равна 0,3—0,5%.

Эталонные установки УЭА-1 и УЭА-2. Данные установки предназначены для проведения измерения активности как в жидких образцах, так и в источниках излучения.

Эталонная установка для воспроизведения единицы активности нуклидов в жидких образцах в пределах от 10^4 до 10^8 расп./с·г) методом счета числа частиц и фотонов, испускаемых источником в единицу времени в телесном угле 4π , и для передачи размера единицы вторичным эталонам в тех же пределах.

К числу нуклидов, единица активности которых воспроизводится данной эталонной установкой, относятся: нуклиды, распадающиеся с испусканием α - или β -частиц (с максимальной энергией не менее 0,3 Мэв), и нуклиды, распадающиеся путем электронного захвата.

Описание установки

В эталонной установке имеется два стенда. На первом из них расположены основной элемент установки — пропорциональный счетчик α - и β -частиц и фотонов с телесным углом 4π .

Корпус 4π -счетчика (рис. 3.31) состоит из двух одинаковых половин в виде цилиндров из латуни диаметром 80 мм и высотой 40 мм. Внутренняя поверхность цилиндров отполирована. В каждом цилиндре имеется анод в виде нити из полированного константана диаметром 100 мкм, натянутой по диаметру цилиндра; концы нити закреплены в изоляторах. Измеряемый источник, укрепленный на монтажной рамке, помещают между цилиндрами. Счетчик закрыт стеклянным колпаком. Его края пришлифованы к металлическому основанию, на котором смонтирован счетчик. С помощью переключателя, смонтированного под основанием счетчика, к регистрирующей системе можно присоединить любую из двух половин 4π -счетчика, работающую как 2π -счетчик, или обе половины вместе.

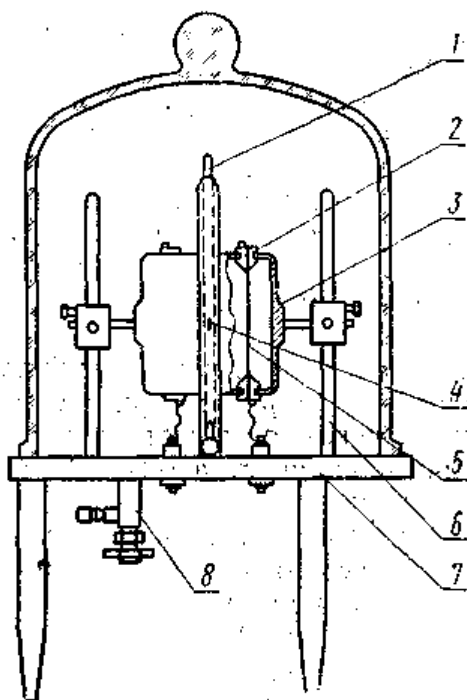


Рис. 3.31. 4π-счетчик эталонной установки:

1 – рамка с измеряемым источником; 2 – полистироловые изоляторы; 3 – корпус счетчика; 4 – источник; 5 – нить; 6 – стойка; 7 – основание счетчика; 8 – кран

Вакуумная система, смонтированная на одном стенде со счетчиком, дает возможность создавать в счетчике вакуум порядка $10^{-2} - 10^{-3}$ мм рт. ст. и наполнять счетчик рабочим газом или смесью газов до давления 600 мм рт. ст. В вакуумной системе имеется специальная колба, наполненная пятиокисью фосфора, для осушки газа.

При счете α - и β -частиц счетчик наполняют техническим метаном до давления 400 мм рт. ст., при измерении активности электроннозахватных нуклидов в счетчик вводят дополнительно к метану различные количества тяжелого инертного газа — аргона, криптона или ксенона.

На втором стенде размещены радиоэлектронные приборы для регистрации импульсов от счетчика: широкополосный усилитель с дискриминатором (с коэффициентом усиления 10^4) и пересчетный прибор с разрешающим временем 1—1,5 мкс. Кроме этих приборов на стенде размещены также стабилизированный выпрямитель на 4 кВ (отклонение напряжения в пределах 0,01—0,05%), служащий источником потенциала, подаваемого на счетчик, измеритель скорости счета, электронный потенциометр, осциллограф и др. Основные характеристики 4π-счетчика и установки в целом приведены в табл. 3.11.

Таблица 3.11

Основные характеристики 4π-счетчика и установки

| Характеристика | Значения характеристик при измерении активности нуклидов: | | |
|--|---|-------------------|----------------------|
| | альфа | бета | электронно-захватных |
| Длина плато счетчика, в | 250—600 | 250—300 | 100—150 |
| Наклон плато на 100 в, % | 0,1 | 0,1 | 0,5 |
| Напряжение на плато, кВ | 2,1—2,2 | 3,2—3,3 | 2—4 |
| Газовое усиление | $10^2—10^3$ | $10^4—10^5$ | $10^4—10^6$ |
| Разрешающее время, мксек | 2 | 2 | 2 |
| Порог регистрации, эв | 50—100 | 100—250 | 100—250 |
| Эффективность счетчика | $1,000 \pm 0,001$ | $1,000 \pm 0,001$ | — |
| Фон счетчика, имп./сек | 0,03 | 2 | 5 |
| Диапазон измеряемой активности, расп./сек | $10^{-1}—10^5$ | $10—10^5$ | $10^2—10^5$ |
| Погрешность измерения активности нуклида в растворе, % | 0,5—1 | 0,5—1 | 2—4 |
| Возможная систематическая погрешность, % | 0,2 | 0,2 | 1—3 |
| Разброс результатов измерений, % | 0,1—0,2 | 0,1—0,2 | 0,5—1 |
| Максимальная площадь активной поверхности измеряемых источников, см ² | 10 | 10 | 10 |

Приготовление источников для измерения активности нуклидов в жидких образцах. Для измерения активности нуклида в жидком образце, определенное количество радиоактивного раствора берут микропипеткой из ампулы, и наносит на подготовленную подложку из тонкой пленки. После высушивания полученный источник, помещают в счетчик и измеряют скорость счета импульсов от заряженных частиц или фотонов. Эта величина является исходной. Активность нуклида в растворе определяют, внося необходимые поправки в исходную величину, и выражают в распадах в секунду на единицу массы раствора, нанесенного на подложку.

Пленочные подложки для источников готовят из целлулоида или перхлорвинила. Раствор целлулоида в ацетоне с добавкой амилацетата или раствор перхлорвинила в толуоле с добавкой нескольких капель скипидара накапывают пипеткой на поверхность охлажденной ниже 10° С дистиллированной воды. Полученную пленку снимают с поверхности воды на кольца из алюминиевой фольги толщиной 100 мкм; наружный диаметр колец 35 мм, внутренний — 20 мм. Полученные пленки из целлулоида имеют поверхностную плотность 8—10 мкг/см², пленки из перхлорвинила — 4 мкг/см².

Приготовленные таким образом пленки на кольцах покрывают с двух сторон золотом — по 10—15 мкг/см² с каждой стороны — путем термораспыления в

специальной установке. Толщина пленок вместе с золотым покрытием оценивается взвешиванием на микроаналитических весах типа СМД-1000. Общая поверхностная плотность целлулоидных пленок с золотым покрытием составляет 28—40 $\text{мкг}/\text{см}^2$, перхлорвиниловых пленок с покрытием — 24—34 $\text{мкг}/\text{см}^2$.

Для уменьшения влияния самопоглощения активный слой источника должен быть равномерным и однородным. С этой целью поверхность полученной подложки перед нанесением на нее радиоактивного раствора предварительно обрабатывают раствором инсулина концентрацией 0,5 международной единицы на 1 мл в кислом водном растворе. На пленку наносят 100—150 мг раствора инсулина и затем особой пипеткой отсасывают примерно $4/5$ нанесенного количества. Затем пленку с остатком инсулина высушивают при комнатной температуре в присутствии хлористого кальция.

Существуют два способа нанесения измеряемого радиоактивного раствора на подложку и определения массы нанесенного раствора: экстраполяционный и пикнометрический. Первый из них заключается в том, что измеряемый раствор наносят на высушенную подложку микропипеткой, изготовленной из полиэтилена (с целью уменьшения потерь радиоактивного вещества из-за адсорбции). Количество нанесенного на подложку раствора определяют взвешиванием подложки с кольцом до и после нанесения раствора; для учета испарения раствора в процессе взвешивания делают несколько последовательных взвешиваний подложки с раствором, отмечая моменты времени каждого взвешивания. Путем экстраполяции результатов взвешиваний к нулевому моменту времени определяют массу раствора, нанесенного на подложку. Взвешивание проводят на микроаналитических весах с точностью до 0,01 мг . Погрешность взвешивания одной капли раствора массой 30—40 мг составляет 0,2%.

При использовании второго способа некоторое количество измеряемого радиоактивного раствора вводят в пикнометр из полиэтилена с длинным капиллярным отростком; для этого кончик предварительно слабо нагретого пикнометра опускают в раствор, после чего пикнометр с введенным в него раствором подвешивают к рычагу микровесов. Накапывание раствора на подложку осуществляют, поднося к телу пикнометра небольшой нагретый паяльник. Массу раствора, нанесенного на подложку, определяют по разности результатов взвешивания пикнометра с раствором до и после накапывания.

Результаты определения массы раствора, нанесенного на подложку, полученные с помощью экстраполяционного метода, оказываются на 0,5% меньше результатов, полученных пикнометрическим методом. Было показано, что пикнометрический метод дает более правильные результаты.

После высушивания изготовленный источник помещают в 4π -счетчик и измеряют активность нуклида в этом источнике с помощью описываемых ниже методик.

Измерение активности α -излучателей. Измерение активности α -излучающего нуклида начинают с определения счетной характеристики счет-

чика, т. е. зависимости числа регистрируемых в единицу времени импульсов или скорости счета I от напряжения U на нитях счетчика.

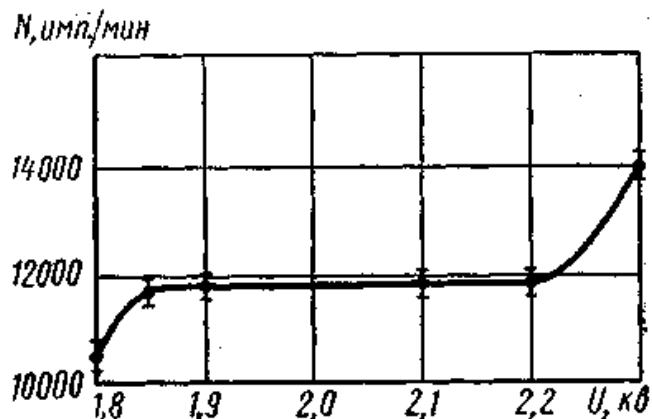


Рис. 3.32. Счетная характеристика 4π-счетчика при счете α-частиц

Счетная характеристика 4π-счетчика при счете α-частиц (рис. 3.32) имеет плато с небольшим наклоном, обусловленным наличием в составе излучения источника α-частиц, потерявших значительную часть своей первоначальной энергии в активном слое источника. Скорость счета импульсов в обеих половинах 4π-счетчика, соответствующая концу плато, является исходной величиной для определения активности нуклида в источнике. В измеренное значение скорости счета вводят ряд поправок.

Прежде всего вводят поправку на просчет α-частиц с энергиями ниже порога дискриминации усилителя. Эту поправку определяют путем снятия так называемой кривой дискриминации, т. е. зависимости скорости счета импульсов от потенциала дискриминации. Для этого измеряют скорость счета импульсов при различных потенциалах дискриминации, начиная с напряжения, соответствующего началу подъема счетной характеристики, обусловленного регистрацией электронной составляющей фона. Затем потенциал дискриминации постепенно увеличивают, переходя в область плато счетной характеристики. Экстраполяцией прямолинейного участка кривой дискриминации (рис. 3.33) к нулевому потенциалу дискриминации получают значение скорости счета I_0 или число α-частиц, соответствующее нулевому потенциалу. Аналитически I_0 можно определить по формуле ,

$$I_0 = I_1 + \frac{I_1 - I_2}{U_2 - U_1} U_1 \quad (3.64)$$

где I_1 и I_2 — скорости счета α-частиц при потенциалах U_1 и U_2 , выбранных с таким расчетом, чтобы I_1 и I_2 лежали на прямолинейной части кривой дискриминации; при этом U_2 превышает U_1 в три-пять раз.

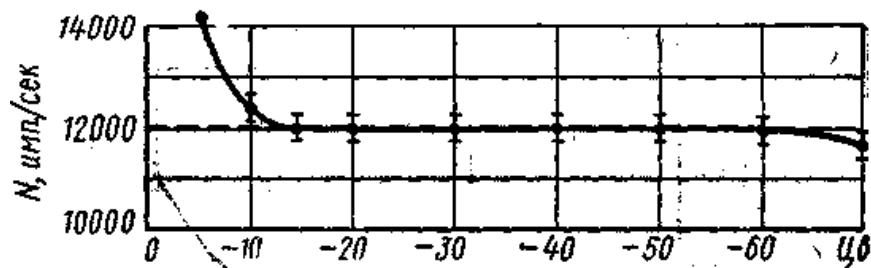


Рис. 3.33. Зависимость скорости счета α -частиц от напряжения записания (кривая дискриминации)

Следующая поправка, которую необходимо вводить, это поправка на поглощение α -частиц в пленке подложки источника. Вследствие этого поглощения скорость счета I'' в половине 4π -счетчика со стороны подложки источника всегда несколько меньше скорости счета I' в половине счетчика со стороны активного слоя. Коэффициент, учитывающий поглощение α -частиц в подложке, рассчитывают по формуле

$$K_q = \frac{I' + I''}{2I'} = 0,5 \left(1 + \frac{I''}{I'} \right) \quad (3.65)$$

Далее в полученное значение I_s в телесном угле 4π вводят поправку на просчет α -частиц, связанный с разрешающим временем счетчика и регистрирующей системы, путем умножения значения N_s на поправочный множитель

$$K_\tau = \frac{1}{1 - \tau I_s} \quad (3.66)$$

где τ — разрешающее время. Значение τ определяют, измерив скорости счета от двух вспомогательных источников, по формуле, аналогичной формуле (3.19)

$$\tau = \frac{1}{I_{изм1,2}} \left(1 - \sqrt{\frac{(I_{изм1,2} - I_{изм1})(I_{изм1,2} - I_{изм2})}{I_{изм1} I_{изм2}}} \right) \quad (3.67)$$

Для исключения влияния самопоглощения вводят поправочный множитель

$$S = \frac{1}{1 - h/2R_0} \quad (3.68)$$

где h — толщина активного слоя источника; R_0 — пробег α -частиц в активном слое.

При уровне фона 4π -счетчика, указанном в табл. 3.11, поправка на фон существенна лишь при измерении «слабых» источников; ее вводят после введения поправки на разрешающее время.

Если при каждом акте распада нуклида испускается одна α -частица, то активность нуклида в источнике численно равна полному числу α -частиц, испускаемых этим источником в 1 сек в телесном угле 4π , и определяется выражением

$$A = \left(\frac{I_{\alpha}}{1 - I_{\alpha}\tau} - I_{\beta} \right) \frac{1}{(1 - h/2R_0) \cdot K_q} \quad (3.69)$$

Все величины, входящие в эту формулу, за исключением R_0 определяют экспериментально в процессе измерения или приготовления источника и независимо одну от другой. Значение R_0 определяют по опубликованным в литературе данным. Наиболее точно, как это будет видно из дальнейшего, следует измерить основную величину – экстраполированное значение скорости счета I_{α} . Остальные величины представляют собой поправки, и погрешности их определения составляют вместе неисключенный остаток систематической погрешности значения активности нуклида.

До последнего времени вопрос о способе сложения систематических и случайных погрешностей не имел строгого решения. Поэтому некоторые авторы предпочитали указывать отдельно обе погрешности. Однако в большинстве случаев такой способ нельзя признать приемлемым и необходимо оценить погрешность результата измерения одним определенным числом. Более подробно оценка погрешности измерений при одновременном наличии случайных и неисключенных систематических погрешностей будет рассмотрена в соответствующем разделе курса.

Хотя точность определения толщины активного слоя и длины пробега α -частиц в активном слое сравнительно невысока, погрешность определения поправки на самопоглощение для α -источников не превышает обычно 0,1—0,2%. Относительная результирующая погрешность измерения активности нуклида в источнике на тонкой подложке равна ~0,25% при доверительной вероятности 0,99. При оценке погрешности измерения удельной активности α -нуклида в растворе необходимо также принять во внимание погрешность взвешивания массы раствора, нанесенного на подложку. Эта погрешность, как было сказано выше, ~0,2%. Следовательно, погрешность измерения удельной активности α -нуклида в растворе составляет 0,3—0,4%.

Измерение активности β -излучателей. Как и при измерении активности β -излучающих нуклидов, изготовленный из данного раствора β -источник на тонкой пленочной подложке помещают в 4 π -счетчик, наполняют его рабочим газом и определяют счетную характеристику. Так как кривая дискриминации при измерении β -источников с достаточно тонким активным слоем имеет прямолинейный участок, лежащий практически параллельно оси абсцисс, необходимость в определении экстраполированного значения скорости счета не возникает. Специальное исследование, выполненное путем измерения электронов Оже ^{51}V (^{51}Cr), показало, что К-пик электронов Оже с энергией 4,9 кэВ соответствовал потенциалу запирающего дискриминатора 100 эВ; таким образом, при потенциале запирающего дискриминатора 2 В, т. е. выше уровня шумов, 4 π -счетчик регистрирует частицы с энергиями выше 100 эВ. Относительное число β -частиц с энергией ниже 100 эВ у нуклидов, активность которых измеряется данной ус-

тановкой, составляет менее 0,1%, так что этой потерей вполне можно пренебречь.

Скорость счета импульсов N , соответствующая рабочей точке в конце плато счетной характеристики, является исходной величиной для определения активности нуклида в источнике. Активность нуклида определяют по формуле

$$A = \left(\frac{I_{изм}}{1 - I_{изм}\tau} - I_{\phi} \right) \cdot \frac{1}{S \cdot K_q \cdot K_{эвк}} \quad (3.70)$$

где S и $K_{эвк}$ — поправочные множители для учета соответственно поглощения частиц в подложке и в активном слое; p — поправочный множитель для учета внутренней конверсии, если она имеется у данного нуклида.

Измерение скорости счета фоновых импульсов, если она значительно меньше скорости счета импульсов от измеряемых источников, повторяют периодически после измерения нескольких источников; если обе скорости счета сравнимы, уровень фона измеряют дважды — до и после измерения скорости счета импульсов от источника, и в качестве поправки берут среднее значение скорости счета фоновых импульсов.

Для определения поправки на поглощение β -частиц в подложке источника проводят дополнительные эксперименты, заклеивая источник дополнительной пленкой толщиной, равной толщине подложки, либо со стороны активного слоя (*метод сэндвича*), либо со стороны подложки (*метод подклейки*). В том и другом случаях измеряют скорость счета в обеих половинах 4π -счетчика с источником без дополнительной пленки и с дополнительной пленкой.

При применении метода сэндвича коэффициент поглощения β -частиц в подложке может быть определен по формуле

$$a = 2 \frac{I_{1,2} - I'_{1,2}}{2I_{1,2} - I'_{1,2}} \quad (3.71)$$

где $I_{1,2}$ и $I'_{1,2}$ — скорости счета импульсов в половинах 4π -счетчика, соединенных параллельно, от источника без дополнительной пленки и соответственно с дополнительной пленкой. Приведенное выражение получено, при допущении, что коэффициент отражения β -частиц от пленки много меньше единицы. Значение активности нуклида в источнике с поправкой на поглощение β -частиц в подложке будет при этом равно

$$A = 2I_{1,2} - I'_{1,2} \quad (3.72)$$

или

$$A = \frac{I_{1,2}}{1 - a/2} \quad (3.73)$$

Таким образом, поправочный множитель, учитывающий поглощение β -частиц в подложке, определяется выражением

$$K_q = \frac{I_{1,2}}{2I_{1,2} - I'_{1,2}} \quad (3.74)$$

где a определено формулой (3.71).

При измерении методом подклейки с учетом поглощения β -частиц в подложке для активности нуклида получаем выражение, аналогичное выражению (3.72)

$$A = 2I_{1,2} - I_{1,2}' \quad (3.72')$$

Несмотря на идентичность формул (3.72) и (3.72'), метод подклейки дает несколько меньшую погрешность, чем метод сэндвича.

Для определения *поправки на поглощение β -частиц в активном слое* из измеряемого раствора готовят серию источников, нанося на подложки различные количества раствора. При этом получают источники с различной толщиной активного слоя дающие различные скорости счета в 4π -счетчике. Далее строят график зависимости скорости счета, отнесенной к единице массы нанесенного раствора от массы раствора в источнике: $I_i/M_i = f(M_i)$. В значения должны быть внесены поправки на разрешающее время и фон счетчика. Можно положить

$$I_i = bK_i M_i \quad (3.73)$$

где b — коэффициент пропорциональности, одинаковый для всех источников; K_i — коэффициент самопоглощения, увеличивающийся по мере увеличения толщины активного слоя. Таким образом, отношение скорости счета к массе раствора в источнике $I_i/M_i = bK_i$.

Для нуклидов с граничной энергией β -частиц больше 300 кэВ через полученные точки можно провести прямую (графически или, что более точно, методом наименьших квадратов). Экстраполируя полученную прямую к нулевому значению M , т. е. к нулевой толщине активного слоя, определяют скорость счета при нулевой толщине активного слоя, т. е. при отсутствии самопоглощения. Точность определения поправки на самопоглощение зависит от числа точек на графике, от их разброса и от способа проведения прямой через эти точки.

Следует заметить, что определение поправки на самопоглощение представляет по существу исследовательскую задачу, решаемую индивидуально для каждого отдельного нуклида.

Поправку на внутреннюю конверсию γ -квантов вводят только в том случае, когда период полураспада возбужденного состояния дочернего ядра больше разрешающего времени установки, т. е. когда β -частицы и конверсионные электроны регистрируются отдельно. Соответствующий поправочный множитель

$$K_{\text{экк}} = \frac{1}{\varepsilon_{\beta} \left(1 + \frac{\alpha}{1 + \alpha} p \frac{\varepsilon_e}{\varepsilon_{\beta}} \right)} \quad (3.74)$$

где α — коэффициент внутренней конверсии; p — доля β -частиц, сопровождаемых γ -квантами, которые могут конвертировать; ε_{β} , ε_e — эффективность регистрации β -частиц и конверсионных электронов.

Эффективность регистрации γ -квантов 4 π -счетчиком обычно довольно мала (около 0,5%), поэтому поправкой на чувствительность счетчика к γ -излучению чаще всего можно пренебречь.

Результирующая погрешность измерения активности нуклида составляет ~5% при доверительной вероятности 0,99.

Эталонная установка для воспроизведения единицы активности нуклидов в α - и β -источниках на металлических подложках в пределах от 10^{-1} до 10^5 расп./сек для α -источников и от 10 до 10^5 расп./сек для β -источников методом счета числа частиц, испускаемых источником в единицу времени в телесном угле 2π , и для передачи размера единицы вторичным эталоном в тех же пределах.

Описание установки. Эталонная установка имеет три стенда. На двух стендах расположены основные элементы установки – малый и большой 4 π -счетчики вместе с вакуумными системами для их откачки и наполнения рабочим газом, на третьем стенде помещены радиоэлектронные приборы для регистрации импульсов от счетчиков, источники питания и вспомогательные приборы.

Малый 4 π -счетчик по размерам и конструкции такой же, как 4 π -счетчик в эталонной установке для измерения активности в растворах. Малый счетчик применяют при воспроизведении единицы активности нуклидов в α - и β -источниках площадью активной поверхности от 1 до 4 $см^2$.

Большой 4 π -счетчик сконструирован специально для воспроизведения единицы активности нуклидов в α - и β -источниках площадью активной поверхности до 160 $см^2$. Счетчик состоит из двух корытообразных половин из латуни высотой 250 мм, шириной 180 мм и глубиной 60 мм; одна половина используется как 2 $\pi\alpha$ -счетчик, другая — как 2 $\pi\beta$ -счетчик. В каждой половине счетчика имеется по три нити из константана диаметром 100 мкм; между ними расположены латунные экранирующие стержни: четыре стержня в 2 $\pi\alpha$ -счетчике и шесть стержней в 2 $\pi\beta$ -счетчике. Внутренняя поверхность счетчика и поверхность нитей и экранирующих стержней отполированы.

Обе половины 4 π -счетчика и монтажная рамка для измеряемого источника, служащая общей стенкой для каждого из 2 π -счетчиков, установлены на латунном основании. Сверху счетчик закрыт стеклянным колпаком, пришлифованным к основанию. Переключатель высокого напряжения позволяет присоединять к измерительному устройству любой 2 π -счетчик отдельно или оба вместе. Счетчик со всех сторон закрывается раздвижным свинцовым экраном толщиной 5 см для снижения уровня фона.

Оба 4 π -счетчика, малый и большой, наполняют метаном до давления 300–400 мм рт. ст.; работают счетчики в пропорциональном режиме.

Конфигурация электродов и взаимное расположение нитей и экранирующих стержней в большом счетчике были установлены экспериментально, в результате исследования серии опытных образцов. Область 100%-ной регистрации α -

и β -излучения большим счетчиком была исследована путем перемещения точечного источника К-электронов Оже ^{51}V (^{51}Cr) по различным участкам площади рамки, а также с помощью обычных α - и β -источников. Регистрируемый спектр излучения ^{51}V сильно зависит от искажения электрического поля в счетчике, что позволило выявить наиболее «критические» области вблизи экранирующих стержней и у краев счетчика и выбрать оптимальную геометрию.

Плато характеристики счетчика, исследованное с помощью «точечного» β -источника $^{90}\text{Sr}+^{90}\text{Y}$, оказалось вполне удовлетворительным в пределах площади 150×200 мм, значительно превышающей максимальные размеры активной поверхности измеряемых источников (105×135 мм); незначительное изменение плато вблизи экранирующих стержней практически не сказывается на точности измерений.

Для регистрации импульсов от счетчиков в установке использованы следующие радиоэлектронные приборы: предусилитель с коэффициентом усиления 20, усилитель с интегральным дискриминатором с коэффициентом усиления 10^4 и коэффициентом перегрузки 100, пересчетный прибор с блоком цифрпечати и разрешающим временем 1 мксек и вспомогательные приборы — синхроскоп, измеритель скорости счета и др.

Основные характеристики большого 4 π -счетчика эталонной установки:

| | 2 α -счетчик | 2 β -счетчик |
|-----------------------------|---------------------|---------------------|
| длина плато, в | 300 | 200 |
| давление метана, мм рт. ст. | 300 | 400 |
| эффективность, % | $100,0^{+0}_{-0,1}$ | $100,0^{+0}_{-0,1}$ |
| фон, имп./сек | 0,05—0,1 | 7—8 |

Измерение активности нуклидов в α -источниках. Измерение активности α -излучающих нуклидов в α -источниках на металлической подложке, как и активности нуклидов в источниках на тонкой пленочной подложке, начинают с определения счетной характеристики счетчика и кривой дискриминации. Отличие от ранее описанной методики заключается в том, что в данном случае измеряют число частиц, испускаемых источником в телесном угле 2π . Экстраполированное к нулевому потенциалу запираения дискриминатора число частиц, отнесенное к единице времени, с поправками на фон счетчика и на разрешающее время, дает значение внешнего излучения источника в телесном угле 2π — важную характеристику источника на металлической подложке, которую наряду с основной характеристикой — активностью нуклида — включают в свидетельства на образцовые α - и β -источники.

Активность нуклида в α -источнике определяют по формулам

$$A = 2 \left(\frac{I_0}{1 - I_0 \tau} - I_\phi \right) K; \quad (3.75)$$

$$K = \frac{1}{1 - h/2R_0 + 0,201\Phi_0}$$

где членом $0,201 \Phi_0$ в поправочном множителе K учитывают обратное рассеяние α -частиц от металлической подложки.

Все величины, входящие в формулу, за исключением поправочного множителя K , определяют экспериментально в процессе измерения данного источника. Значение K определяют по данным (R_0, Φ_0) , получаемым из соответствующих литературных источников, и из паспорта или технических условий на измеряемый источник (h).

Для образцовых α -источников из ^{239}Pu на подложках из нержавеющей стали $h=250\pm 50 \text{ мкг/см}^2$; $0,201\Phi_0 = 0,014$; $R_0=12 \text{ мг/см}^2$. При $I_0=10^4$ имп./с погрешность измерения активности нуклида в α -источнике, соответствующая доверительной вероятности 0,99, оказывается равной 2—3%.

Измерение активности нуклидов в β -источниках. Методика измерения активности β -излучающих нуклидов в β -источниках на металлических подложках принципиально не отличается от методики, применяемой при эталонировании α -источников. Сначала определяют внешнее излучение источника в телесном угле 2π по формуле

$$I_0 = \frac{I_{\text{изм}}}{1 - I_{\text{изм}} \tau} - I_\phi \quad (3.76)$$

Активность нуклида в β -источнике определяют по полученному значению внешнего излучения и по коэффициенту R , связывающему обе эти величины для источника данного типа,

$$A = I_0 R \quad (3.77)$$

Коэффициент R включает в себя поправки на поглощение частиц в активном слое источника и в защитной пленке, покрывающей активный слой, и отражение частиц от подложки. Значение R зависит от вида нуклида, от материала и состояния поверхности подложки, от технологии нанесения активного слоя и его структуры. Для образцовых β -источников из $^{90}\text{Sr}+^{90}\text{Y}$ на алюминиевых подложках, изготовленных путем накапывания раствора указанных нуклидов на фильтровальную бумагу и заклеенных алюминиевой фольгой толщиной 50 мкм, $R=2,66\pm 0,05$. Это значение определено в результате исследования набора рабочих эталонов единицы активности $^{90}\text{Sr}+^{90}\text{Y}$ в виде источников, изготовленных по упомянутой технологии. Активность нуклидов в исходном растворе была определена методом $4\pi\beta$ -счета с помощью эталонной установки УЭА-1. Затем с помощью микропипетки раствор равномерно нанесли на фильтровальную бумагу; количество нанесенного раствора определяли взвешиванием. Изготовленный и высушенный источник был заклеен алюминиевой фольгой указанной

выше толщины. Таким образом, активность нуклидов в изготовленном источнике определена по активности этих нуклидов на единицу массы раствора и по количеству раствора, внесенного в источник. Внешнее излучение изготовленных источников измерено с помощью $2\pi\beta$ -счетчиков. Значение $R=2,66\pm 0,05$ было получено как среднее для серии источников площадью активной поверхности от 1 до 160 см^2 . Это значение может быть использовано при аттестации в качестве рабочих эталонов единицы активности $^{90}\text{Sr}+^{90}\text{Y}$ других источников, изготовленных по той же технологии. Критерием применимости к этим источникам приведенного значения R является идентичность спектрального состава внешнего излучения аттестуемого и эталонного источников. Наиболее простым способом сравнения спектров β -излучения является снятие кривых поглощения с помощью $2\pi\beta$ -счетчика данной эталонной установки.

Относительная погрешность значения активности $^{90}\text{Sr}+^{90}\text{Y}$ в источниках, изготовленных «капельным» методом и аттестуемых с помощью эталонной установки УЭА-2, равна 3% при доверительной вероятности 0,99.

3.2. Методы $\alpha\gamma$ - $\beta\gamma$ - и $\gamma\gamma$ -совпадений.

Метод применим для измерения активности нуклидов, распад которых сопровождается испусканием одного или нескольких квантов γ - или рентгеновского излучения. Таким образом, возможность применения этого метода несколько ограничена, однако он обладает большим преимуществом перед другими, более универсальными методами, заключающимся в том, что не требует определения поправки на «самопоглощение» и благодаря этому позволяет достичь более высокой точности результата измерений. Со времени первых публикаций о применении метода совпадений он получил широкое распространение и используется в настоящее время как один из наиболее точных методов воспроизведения единицы активности нуклидов в метрологических институтах многих стран.

При измерении активности нуклидов методом совпадений регистрируются совпадения между α -частицами и γ -квантами, между β -частицами и γ -квантами, между двумя γ -квантами, между квантами γ - и рентгеновского излучений или, наконец, между квантами рентгеновского излучения (например, между K- и L-квантами). Измерения осуществляют, как правило, с помощью двух счетчиков, соединенных с радиоэлектронным устройством, регистрирующим число импульсов в каждом счетчике и число совпадающих во времени импульсов в обоих счетчиках.

Принцип метода совпадений удобно рассмотреть на наиболее простом случае измерения активности нуклида, распадающегося, с испусканием одной β -частицы, сопровождаемой одним γ -квантом (рис. 3.34 а).

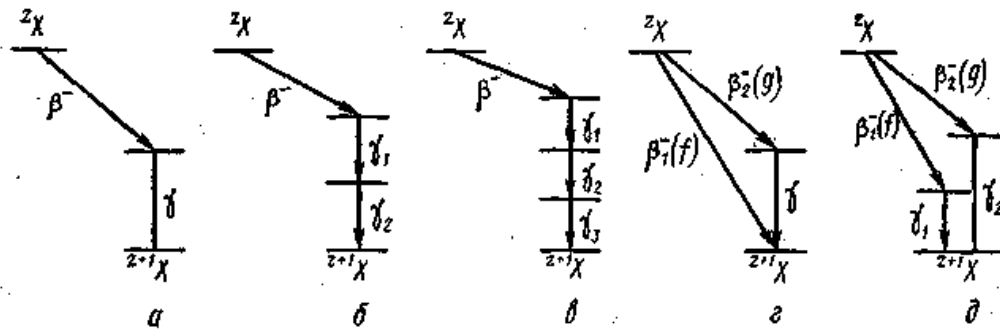


Рис. 3.34 Схемы распада радионуклидов

При этом необходимо, чтобы среднее время жизни возбужденного состояния распавшегося ядра было много меньше разрешающего времени радиоэлектронного устройства счета совпадений («схемы совпадений»), т. е. чтобы можно было считать, что частица и γ -квант испускаются практически одновременно.

Положим, что каждый из двух счетчиков чувствителен только для одного вида излучения. Тогда скорости счета в β - и γ -счетчиках при точечном источнике с активностью нуклида A будут равны соответственно

$$\begin{aligned} I_{\beta} &= A \eta_{\beta} \varepsilon_{\beta} \\ I_{\gamma} &= A \eta_{\gamma} \varepsilon_{\gamma} \end{aligned} \quad (3.78)$$

где η_{β} и η_{γ} – относительные телесные углы, внутри которых излучение попадает в счетчики; ε_{β} и ε_{γ} – эффективности регистрации β - и γ -излучения с учетом эффектов поглощения и «самопоглощения». Произведения $\eta_{\beta} \varepsilon_{\beta}$ и $\eta_{\gamma} \varepsilon_{\gamma}$ можно рассматривать как вероятности регистрации излучений. Если угловая корреляция между направлениями вылета частиц и квантов отсутствует, то эти вероятности будут независимы. Тогда число совпадений в единицу времени между импульсами от частиц и квантов

$$I_c = A \eta_{\beta} \eta_{\gamma} \varepsilon_{\beta} \varepsilon_{\gamma} \quad (3.79)$$

В результате получаем

$$\frac{I_{\beta} I_{\gamma}}{I_c} = \frac{A \eta_{\beta} \varepsilon_{\beta} \cdot A \eta_{\gamma} \varepsilon_{\gamma}}{A \eta_{\beta} \eta_{\gamma} \varepsilon_{\beta} \varepsilon_{\gamma}} = A \quad (3.80)$$

Полученная формула применима также и при измерении активности нуклидов, у которых простой β -распад сопровождается испусканием двух и более квантов (рис. 3.34, б и в).

Формула (3.80) показывает, что значение активности нуклида, измеренное методом совпадений, не зависит ни от телесных углов, ни от эффективности регистрации частиц и квантов, и, следовательно, поглощение излучения источника в самом источнике и подложке не отражается на результатах измерений. Благодаря этому метод совпадений, примененный для измерения активности нуклидов с подходящей схемой распада, может дать более точные результаты по сравнению с другими методами, например методом 4π -счета.

Если нуклид имеет более сложную схему распада, вид формулы для определения активности несколько усложняется. Рассмотрим некоторые случаи β -распада.

а. Сложный β -распад по двум ветвям с относительными интенсивностями f и g ($f+g=l$), сопровождаемый испусканием одного γ -кванта (рис. 3.34,г). В этом случае

$$\begin{aligned} I_{\beta} &= A(f\varepsilon_{\beta 1} + g\varepsilon_{\beta 2})\eta_{\beta}; \\ I_{\gamma} &= Ag\varepsilon_{\gamma}\eta_{\gamma}; \\ I_c &= Ag\varepsilon_{\beta 2}\varepsilon_{\gamma}\eta_{\beta}\eta_{\gamma}; \end{aligned} \quad (3.81)$$

$$\frac{I_{\beta}I_{\gamma}}{I_c} = A \frac{(f\varepsilon_{\beta 1} + g\varepsilon_{\beta 2})g\varepsilon_{\gamma}\eta_{\beta}\eta_{\gamma}}{g\varepsilon_{\beta 2}\varepsilon_{\gamma}\eta_{\beta}\eta_{\gamma}} = A \left(g + f \frac{\varepsilon_{\beta 1}}{\varepsilon_{\beta 2}} \right)$$

Если в качестве β -счетчика применен 4π -счетчик и самопоглощение и поглощение в подложке измеряемого источника невелики, то эффективности $\varepsilon_{\beta 1}$ и $\varepsilon_{\beta 2}$ равны; при этом

$$\frac{I_{\beta}I_{\gamma}}{I_c} = A \quad (3.82)$$

т. е. полученное выражение для A совпадает с формулой (3.80).

Сложный β -распад по двум ветвям с относительными интенсивностями f и g ($f+g=l$), и испусканием двух γ -квантов (рис. 3,5). В этом случае

$$\begin{aligned} I_{\beta} &= A(f\varepsilon_{\beta 1} + g\varepsilon_{\beta 2})\eta_{\beta}; \\ I_{\gamma} &= A(f\varepsilon_{\gamma 1} + g\varepsilon_{\gamma 2})\eta_{\gamma}; \\ I_c &= A(f\varepsilon_{\beta 1}\varepsilon_{\gamma 1} + g\varepsilon_{\beta 2}\varepsilon_{\gamma 2})\eta_{\beta}\eta_{\gamma}; \end{aligned} \quad (3.83)$$

$$\begin{aligned} \frac{I_{\beta}I_{\gamma}}{I_c} &= A \frac{(f\varepsilon_{\beta 1} + g\varepsilon_{\beta 2})(f\varepsilon_{\gamma 1} + g\varepsilon_{\gamma 2})\eta_{\beta}\eta_{\gamma}}{(f\varepsilon_{\beta 1}\varepsilon_{\gamma 1} + g\varepsilon_{\beta 2}\varepsilon_{\gamma 2})\eta_{\beta}\eta_{\gamma}} = \\ &= A \frac{(f\varepsilon_{\beta 1} + g\varepsilon_{\beta 2})(f\varepsilon_{\gamma 1} + g\varepsilon_{\gamma 2})}{f\varepsilon_{\beta 1}\varepsilon_{\gamma 1} + g\varepsilon_{\beta 2}\varepsilon_{\gamma 2}} \end{aligned}$$

При использовании $4\pi\beta$ -счетчика $\varepsilon_{\beta 1} = \varepsilon_{\beta 2}$,

$$\frac{I_{\beta}I_{\gamma}}{I_c} = A \quad (3.84)$$

т. е. опять получаем выражение, аналогичное формуле (3.80).

в. Внутренняя конверсия γ -излучения при простой схеме распада (см. рис. 3,а). В этом случае можно считать, что число конверсионных электронов

$$I_{ce} = \frac{a}{1+a} A \quad (3.85)$$

где a — коэффициент внутренней конверсии, т. е. отношение числа испущенных конверсионных электронов к числу испускаемых γ -квантов.

В данном случае уже необходимо вводить поправку на схему распада. Более подробно данную поправку мы рассмотрим далее

$$A = \frac{I_{\beta} I_{\gamma}}{I_c} \cdot \frac{1}{\left[1 + \frac{1 - \varepsilon_{\beta}}{\varepsilon_{\beta}} \cdot \frac{a}{1+a} \varepsilon_{ce} \right]} \quad (3.86)$$

где ε_{ce} — эффективность регистрации конверсионных электронов.

При выводе этой формулы предполагалось, что γ -счетчик не регистрирует характеристическое излучение, возникающее в результате внутренней конверсии β -излучения. В действительности сцинтилляционный γ -счетчик чувствителен и к этому излучению.

При выводе приведенных выше формул эффективность счетчиков предполагалась одинаковой для излучения, исходящего из любого элемента объема источника; предполагалось также, что активность распределена по объему источника равномерно.

Как следует из сказанного выше, наивысшая точность измерений методом совпадений частиц и квантов достигается при использовании 4π -счетчика для регистрации частиц (методами $4\pi\alpha\gamma$ - и $4\pi\beta\gamma$ -совпадений). Как показывают результаты международных сличений, погрешность измерения активности ^{241}Am методом $4\pi\alpha\gamma$ -совпадений составляет 0,1–0,2% и погрешность измерения активности ^{60}Co методом $4\pi\beta\gamma$ -совпадений – 0,2–0,5%.

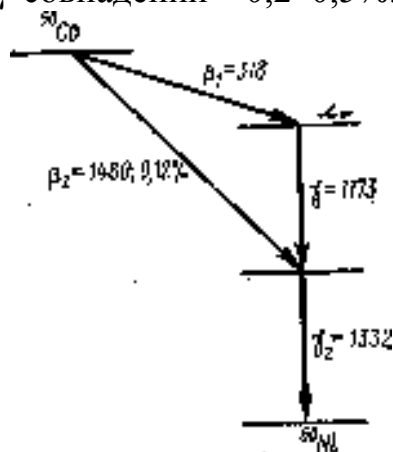


Рис. 3.35. Схема распада ^{60}Co (значения даны в кэВ)

Метод $\gamma\gamma$ -совпадений удобен для измерения активности нуклидов в источниках произвольной формы или в источниках, заключенных в оболочки, например в растворах радионуклидов, помещенных в ампулы. Этот метод применим только для нуклидов, у которых при распаде испускаются два кванта каскадом. Наибо-

лее распространенным таким нуклидом является ^{60}Co , схема распада которого изображена на рис. 3.35.

При измерении активности нуклидов методом $\gamma\gamma$ -совпадений используют два одинаковых γ -счетчика. Если измеряемый нуклид имеет схему распада, подобную схеме распада ^{60}Co , скорости счета в каналах

$$\begin{aligned} I_1 &= A(\varepsilon_{\gamma 1}^{(1)} + \varepsilon_{\gamma 2}^{(1)} - \varepsilon_{\gamma 1}^{(1)} \varepsilon_{\gamma 2}^{(1)}) \eta_1 \\ I_2 &= A(\varepsilon_{\gamma 1}^{(2)} + \varepsilon_{\gamma 2}^{(2)} - \varepsilon_{\gamma 1}^{(2)} \varepsilon_{\gamma 2}^{(2)}) \eta_2 \\ I_{1,2} &= A(\varepsilon_{\gamma 1}^{(1)} \varepsilon_{\gamma 2}^{(2)} + \varepsilon_{\gamma 2}^{(1)} \varepsilon_{\gamma 1}^{(2)}) \eta_1 \eta_2 \end{aligned} \quad (3.87)$$

В этой системе из трех уравнений имеется пять неизвестных. Поэтому решить ее возможно только для некоторых частных случаев. Если оба счетчика идентичны, можно положить, что

$$\frac{\varepsilon_{\gamma 1}^{(1)}}{\varepsilon_{\gamma 2}^{(1)}} = \frac{\varepsilon_{\gamma 1}^{(2)}}{\varepsilon_{\gamma 2}^{(2)}} = 1 - \delta \quad (3.88)$$

Если при этом $\varepsilon_{\gamma 1}$, $\varepsilon_{\gamma 2}$ и δ очень малы, то

$$A = \frac{I_1 I_2}{2 I_{1,2}} \quad (3.89)$$

Эта формула применима при измерении активности нуклидов, у которых энергии обоих γ -квантов приблизительно одинаковы, как у ^{60}Co ; если же энергии различны, как, например, у ^{24}Na (1,37 и 2,76 МэВ), дискриминаторы в каналах сцинтилляционных счетчиков следует устанавливать на соответствующие пороги дискриминации.

К недостаткам метода $\gamma\gamma$ -совпадений относятся необходимость учета угловой корреляции между γ -квантами и рассеяние γ -квантов из одного счетчика в другой. Угловую корреляцию учитывают надлежащей установкой счетчиков относительно измеряемого источника. Для устранения влияния рассеяния γ -квантов используют в обоих каналах дифференциальные, амплитудные анализаторы, настроенные на энергию первичных квантов; однако при этом эффективность счетчиков сильно уменьшается – до значений порядка долей процента. На основании результатов международных сличений погрешность измерения активности ^{60}Co методом $\gamma\gamma$ -совпадений составляет $\sim 1\%$.

Эталонная установка УЭА-3. Эталонная установка УЭА-3 служит для воспроизведения единицы активности α (γ)-и β (γ)-нуклидов в жидких образцах и в $\beta(\gamma)$ -источниках в пределах от 10^2 до 10^5 – 10^6 расп./с методом счета числа частиц и фотонов, испускаемых источником в единицу времени в телесном угле 4π , в сочетании со счетом числа совпадений между частицами и фотонами, а также для передачи размера единицы вторичным эталоном в тех же пределах.

Описание установки

В эталонной установке УЭА-3 применен метод $4\pi\alpha\gamma$ - и $4\pi\beta\gamma$ -совпадений, описанный в предыдущей главе. Установка имеет два стенда: на первом смонтирован проточный пропорциональный счетчик α - и β -частиц с телесным углом 4π и два сцинтилляционных счетчика γ -квантов, на втором – радиоэлектронная аппаратура для счета импульсов и отбора совпадений и источники питания.

Проточный 4π -счетчик «коробчатого» типа («pill-box») состоит из двух половин с внутренними цилиндрическими полостями диаметрами 70 мм и высотой 35 мм. Нити из константана диаметром 30 мкм, по одной в каждой половине, натянуты по диаметру цилиндров. Рабочий газ (метан) вводят в каждую половину счетчика отдельно, выход газа происходит через шлюз, в который вставляют измеряемые источники. Конструкция шлюза при наличии небольшого избыточного давления газа внутри счетчика дает возможность менять источники без нарушения режима работы счетчика. При установившемся нормальном режиме работы расход метана составляет около $60 \text{ мм}^3/\text{сек}$. Для уменьшения фона счетчик закрыт свинцовым экраном толщиной 70 мм с отверстиями со стороны торцовых стенок для установки двух сцинтилляционных γ -счетчиков вплотную к стенкам 4π -счетчика. Каждый сцинтилляционный счетчик состоит из монокристалла NaI(Tl) диаметром 40 мм и высотой 50 мм, соединенного с фотоэлектронным умножителем. Сцинтилляционные счетчики помещены в свинцовые экраны толщиной 50—70 мм.

Так как измерение активности каждого отдельного нуклида имеет свои особенности, установка УЭА-3 сделана универсальной, дающей возможность изменять условия измерения в сравнительно широких пределах за счет изменения режимов работы и параметров детекторов излучений и радиоэлектронных приборов.

Методика измерений активности нуклидов. При общем рассмотрении метода совпадений была приведена основная формула для определения активности нуклида, распад которого сопровождается γ -излучением,

$$A = \frac{I_{\beta} I_{\gamma}}{I_c}$$

В этой формуле не учтены поправки на схему распада нуклида, на разрешающее время каналов, случайные совпадения, чувствительность 4π -счетчика к γ -излучению и др.

Поправка на случайные совпадения определяется разрешающим временем схемы совпадений τ_R . Число случайных совпадений в единицу времени

$$I_{сл} = 2\tau_R I_{\beta} I_{\gamma} \quad (3.90)$$

С увеличением активности нуклида в измеряемом источнике возрастает и число случайных совпадений, и когда активность приближается по числовому значению к $1/\tau_R$, число случайных совпадений становится сравнимо с числом истинных совпадений, вследствие чего точность измерения активности уменьшается.

Это обстоятельство ограничивает верхний предел значений активности, измеряемых методом совпадений.

Из формул для определения числа истинных совпадений наилучшей т. е. дающей наиболее правильные результаты, является формула, предложенная Кемпионом:

$$I_c = \frac{I'_c - 2\tau_R I'_\beta I'_\gamma}{1 - \tau_R (I'_\beta + I'_\gamma)} \quad (3.91)$$

где I'_c , I'_β и I'_γ — наблюдаемые скорости счета импульсов в счетчиках и схеме совпадений, включая фон.

Помимо случайных совпадений при определении активности нуклида методом $4\pi\beta\gamma$ -совпадений учитывают также следующие поправки:

- на фон счетчиков,
- на просчеты из-за разрешающего времени каналов,
- на чувствительность 4π -счетчика к γ -излучению,
- на особенности схемы распада измеряемого нуклида.

Активность нуклида с простой схемой распада определяют по формуле

$$A = \frac{MK_R}{(1 + K_\varepsilon)D} \quad (3.92)$$

$$M = \frac{I_\beta I_\gamma}{I_c} \quad (3.93)$$

M представляет собой неисправленное значение активности нуклида в источнике (с учетом только уровня фона в каналах); множитель

$$K_R = \frac{1 - \tau_R (I'_\beta + I'_\gamma)}{1 - 2\tau_R \frac{I'_\beta I'_\gamma}{I'_c}} \quad (3.95)$$

является поправочным, учитывающим конечное разрешающее время схемы совпадений;

$$D = 1 - I'_c \tau \text{ для } \tau_c < \tau'$$

$$D = 1 - I'_c (\tau_\beta + \tau_\gamma - \tau_c) \text{ для } \tau_c > \tau' \quad (3.96)$$

представляет собой поправку, учитывающую влияние разрешающего времени в каналах регистрации частиц, квантов и совпадений, τ_R — разрешающее время схемы совпадений; τ_β , τ_γ , τ_c — разрешающее время в каналах; τ , τ' — минимальное и максимальное из значений τ_β , τ_γ , соответственно; N'_β , N'_γ и N'_c — непосредственно наблюдаемые скорости счета в каналах (без поправок); N_β , N_γ и N_c — скорости счета в каналах за вычетом фона; K_ε — поправка на схему распада.

Несмотря на то, что формула (3.92) получена из исходной формулы с некоторыми приближениями и допущениями, она, как показала экспериментальная проверка, дает одинаковые в пределах погрешности измерений значения активности A при различном разрешающем времени и при различной эффективности γ -счетчика.

Значение разрешающего времени в каналах определяют описанным выше методом трех измерений скоростей счета от двух источников с примерно одинаковой активностью нуклида. Разрешающее время прибора отбора совпадений может быть определено двумя методами: с помощью линии задержки или по числу случайных совпадений. Недостатком первого метода является отличие импульсов, поступающих на вход прибора совпадений, по форме и амплитуде от импульсов, поступающих от счетчиков. Значительно более точно разрешающее время может быть определено вторым методом с использованием двух источников, устанавливаемых таким образом, чтобы излучение одного источника регистрировалось только одним счетчиком; при этом истинные совпадения не происходят и значение разрешающего времени определяют, используя формулу Кемпиона. Загрузка счетчиков при этих измерениях должна быть настолько мала, чтобы просчетами из-за «мертвого» времени можно было пренебречь.

На практике при измерениях методом совпадений кроме поправок на случайные совпадения необходимо вводить целый ряд поправок. Прежде всего это поправка на неравномерность источника. При выводе уравнения

$$A = \frac{I_{\beta} I_{\gamma}}{I_c} \quad (3.80)$$

предполагали, что источник точечный, т.е. эффективность счетчиков одинакова для излучения, исходящего из любого элемента объема источника. Случай распределенного источника может быть рассмотрен, интегрируя основные уравнения метода совпадений по всему объему распределенного источника,

$$A = \frac{I_{\beta} I_{\gamma}}{I_c} \cdot \frac{\overline{\varepsilon_{\beta} \varepsilon_{\gamma}}}{\overline{\varepsilon_{\beta} \varepsilon_{\gamma}}} \quad (3.97)$$

где $\overline{\varepsilon_{\beta}}, \overline{\varepsilon_{\gamma}}$ - средние значения эффективностей регистрации бета- и гамма-излучения; $\overline{\varepsilon_{\beta} \varepsilon_{\gamma}}$ - среднее произведение этих эффективностей.

Если одна из величин ($\overline{\varepsilon_{\beta}}$ или $\overline{\varepsilon_{\gamma}}$) остается постоянной в течение времени измерений для всех точек источника, то уравнение (3.97) превращается в уравнение (3.80). При этом значение эффективности другого детектора может меняться со временем. Это рассуждение применимо и для случая неравномерного распределения активности вещества в источнике. Очевидно, что условие постоянства одной из эффективностей выполняется, если эффективность регистрации, например, бета-излучения, будет близка к 100 %. Этого добиваются в методе 4π -бета-гамма-совпадений, используя для регистрации бета-частиц пропорциональные 4π -счетчики и изготавливая источники с малой толщиной актив-

ного слоя на тонких пленках-подложках. Даже при небольших энергиях бета-частиц ($< 3 \text{ МэВ}$), когда эффективность регистрации их в 4л-счетчике из-за поглощения в самом источнике уменьшается на 10-15 %, поправка на изменение эффективности 4л-счетчика по сравнению с точечным источником составляет $< 0,009 \%$, т.е. пренебрежимо мала.

Счетчик фотонов гамма-излучения (обычно это сцинтилляционные счетчики) можно сделать нечувствительным к бета-излучению путем использования дополнительных поглотителей, если для поглощения бета-частиц недостаточно толщины стенок 4л-счетчика и крышки кристалла сцинтилляционного счетчика. Но счетчик гамма-излучения в некоторых случаях может регистрировать фотоны *тормозного излучения*. В работе Кэмпсона приводится выражение для расчета поправки, учитывающей этот эффект, т.е. *поправки на чувствительность счетчика гамма-фотонов к бета-излучению* :

$$\frac{I_{\beta}I_{\gamma}}{I_c} = A \left[1 - \frac{(1 - \varepsilon_{\gamma})(1 - \varepsilon_{\beta})I_{\gamma m}}{\varepsilon_{\gamma}\varepsilon_{\beta}A} \right] \quad (3.98)$$

где $I_{\gamma m}$ - скорость счета фотонов тормозного излучения в счетчике гамма-излучения; $I_{\gamma m}/A$ может быть рассчитано теоретически или определено экспериментально с помощью источников бета-излучающих нуклидов без сопровождающего гамма-излучения. В той же работе приведен пример такого эксперимента с помощью источников «чистого» бета-излучающего нуклида ^{32}P : отношение N_{γ} / A составляет $\sim 2 \cdot 10^{-3}$ в области энергий свыше 100 кэВ и $6 \cdot 10^{-5}$ для энергий свыше 500 кэВ.

Таким образом, в большинстве случаев эта поправка очень мала. Ее значение можно уменьшить до пренебрежимо малого, если гамма-излучение регистрировать в соответствующем энергетическом «окне» дифференциального дискриминатора импульсов.

Счетчик бета-частиц почти всегда чувствителен к гамма-излучению из-за вероятности взаимодействия гамма-фотонов со стенками счетчика («стеночный эффект»), поэтому необходима поправка *на чувствительность счетчика бета-частиц к гамма-излучению*. Для радионуклидов с простой схемой распада (один гамма-фотон и одна бета-частица) скорость счета в детекторе бета-излучения можно представить в виде:

$$I_{\beta} = A[\varepsilon_{\beta} + (1 - \varepsilon_{\beta}) \cdot \varepsilon_{\beta\gamma}] \quad (3.99)$$

где $\varepsilon_{\beta\gamma}$ - чувствительность бета-счетчика к гамма-излучению.

Произведение $(1 - \varepsilon_{\beta}) \cdot \varepsilon_{\beta\gamma}$ означает долю распадов, при которых гамма фотон может быть зарегистрирован в счетчике бета-излучения как отдельный импульс (в отсутствие бета-частицы). Тогда базовое выражение может быть записано в виде:

$$\frac{I_{\beta}I_{\gamma}}{I_c} = A \left[1 + \frac{(1 - \varepsilon_{\beta})\varepsilon_{\beta\gamma}}{\varepsilon_{\beta}} \right] \quad (3.100)$$

Поправку в формуле (5.39) можно свести к минимуму, если сделать $\varepsilon_{\beta\gamma}$, малой, а ε_{β} - по возможности, близкой к единице. Эти условия могут быть выполнены при использовании метода 4π -бета-гамма-совпадений и специальной конструкции 4π -счетчика, уменьшающей стеночный эффект. Из формулы (3.100) следует, что график зависимости

$$I_{\beta}I_{\gamma}/I_c \text{ от } (1 - \varepsilon_{\beta})/\varepsilon_{\beta}$$

представляет собой прямую линию с наклоном, определяемым $\varepsilon_{\beta\gamma}$.

Если в схеме распада радионуклида имеется *несколько гамма-фотонов, испускаемых в каскаде*, существует вероятность (ε_c) *одновременной их регистрации в обоих счетчиках в отсутствие зарегистрированной бета-частицы*. В этом случае скорость счета совпадений может быть записана в виде:

$$I_c = A[\varepsilon_{\beta}\varepsilon_{\gamma} + (1 - \varepsilon_{\beta}) \cdot \varepsilon_c]$$

$$\frac{I_{\beta}I_{\gamma}}{I_c} \cong A \left[1 + \frac{1 - \varepsilon_{\beta}}{\varepsilon_{\beta}} \left(\varepsilon_{\beta\gamma} - \frac{\varepsilon_c}{\varepsilon_{\gamma}} \right) \right] \quad (3.101)$$

Значения поправок, связанных с ε_{β} , ε_{γ} и ε_c , в очень большой степени определяются используемой аппаратурой, и в методе 4π -бета-гамма-совпадений они могут быть очень малыми. Однако в любом случае необходимы специальные исследования для их выявления и оценки.

При методе совпадений также вводят *поправку на внутреннюю конверсию гамма-излучения*. Если при распаде радионуклида происходит процесс внутренней конверсии гамма-фотонов, то испускаемый при этом электрон конверсии регистрируется в счетчике наряду с бета-частицами. Конверсионный электрон может дать импульс в счетчике бета-частиц в отсутствие совпадающей с ним бета-частицы. Тогда скорости счета в каналах регистрации бета-излучения и совпадений, соответственно:

(3.102)

$$I_{\beta} = A \left[\varepsilon_{\beta} + (1 - \varepsilon_{\beta}) \frac{a}{1+a} \varepsilon_{ce} \right] \eta_{\beta};$$

$$I_{\gamma} = A \left[\frac{1}{1+a} \varepsilon_{\gamma} \right] \eta_{\gamma};$$

$$I_c = A \left[\varepsilon_{\beta} \frac{1}{1+a} \varepsilon_{\gamma} \right] \eta_{\beta} \eta_{\gamma}$$

где a - полный коэффициент внутренней конверсии; ε_{ce} — вероятность регистрации в счетчике конверсионных электронов; — вероятность совпадений из-за возможной регистрации гамма-излучения в обоих детекторах вследствие эффекта Комптона и

$$\frac{I_{\beta} I_{\gamma}}{I_c} = A \left[1 + \frac{1 - \varepsilon_{\beta}}{\varepsilon_{\beta}} \cdot \frac{a}{1+a} \varepsilon_{ce} \right] \quad (3.103)$$

Значение ε_{ce} близко к 1, таким образом, значение поправки в этом случае определяется отношением $\frac{a(1 - \varepsilon_{\beta})}{(1+a)\varepsilon_{\beta}}$ т.е. зависит от значения коэффициента

внутренней конверсии a и эффективности счетчика к бета-излучению. При малых значениях a и $\varepsilon_{\beta} \rightarrow 1$ поправка пренебрежимо мала, и зависимость функции $I_{\beta} I_{\gamma} / I_c$ от $(1 - \varepsilon_{\beta}) / \varepsilon_{\beta}$ будет аппроксимироваться прямой линией почти без наклона. Если появляется наклон, необходимо применять экстраполяционный метод 4π-бета-гамма-совпадений, о котором будет сказано ниже.

Поправку в случае сложной схемы распада определяют следующим образом. Метод совпадений можно применять для радионуклидов, имеющих несколько ветвей бета-распада, если эффективность одного детектора (бета- или гамма-излучения) остается постоянной для всех ветвей.

В работе Кэмпиона показано, что это условие выполняется при использовании систем с высокой эффективностью регистрации излучения хотя бы в одном канале, в частности, при использовании 4π-счетчика для регистрации бета-излучения. Мы уже рассматривали формулу для расчета активности радионуклида в методе 4π-бета-гамма-совпадений при наличии в его схеме распада двух ветвей бета-распада с относительными интенсивностями f и g ($f+g=1$):

$$\frac{I_{\beta} I_{\gamma}}{I_c} = A \frac{(f\varepsilon_{\beta 1} + g\varepsilon_{\beta 2})(f\varepsilon_{\gamma 1} + g\varepsilon_{\gamma 2})\eta_{\beta}\eta_{\gamma}}{(f\varepsilon_{\beta 1}\varepsilon_{\gamma 1} + g\varepsilon_{\beta 2}\varepsilon_{\gamma 2})\eta_{\beta}\eta_{\gamma}} =$$

$$= A \frac{(f\varepsilon_{\beta 1} + g\varepsilon_{\beta 2})(f\varepsilon_{\gamma 1} + g\varepsilon_{\gamma 2})}{f\varepsilon_{\beta 1}\varepsilon_{\gamma 1} + g\varepsilon_{\beta 2}\varepsilon_{\gamma 2}}$$

которая после ряда преобразований принимает вид

$$\frac{I_{\beta}I_{\gamma}}{I_c} = A \left[1 - \frac{fg(\varepsilon_{\beta 1} - \varepsilon_{\beta 2})(\varepsilon_{\gamma 1} - \varepsilon_{\gamma 2})}{f\varepsilon_{\beta 1}\varepsilon_{\gamma 1} + g\varepsilon_{\beta 2}\varepsilon_{\gamma 2}} \right] \quad \text{????} \quad (3.104)$$

В этом выражении поправка будет равна нулю, если $\varepsilon_{\beta 1} = \varepsilon_{\beta 2}$ или $\varepsilon_{\gamma 1} = \varepsilon_{\gamma 2}$. Для экстремального случая, когда $a = b = 0,5$, $\varepsilon_{\beta a}$ отличается от $\varepsilon_{\beta b}$ на 10...15 %, а ε_{γ} может меняться от 10 до 20 %, поправка составит ~2,7 %. На практике же указанная поправка составляет менее 0,1 этой величины, и ею можно пренебречь.

На практике часто невозможно сделать детекторы нечувствительными к совпадающему виду излучения, особенно при наличии конверсии гамма-излучения. Тогда, как показано ранее, результат измерения методом совпадений становится функцией величины

$$\frac{1 - \varepsilon_{\beta}}{\varepsilon_{\beta}}$$

и для получения истинного значения активности A необходимо экстраполировать эту функцию к $\varepsilon_{\beta} \rightarrow 1$.

Экстраполяционный метод совпадений реализуется следующим образом

Если обозначить

$$Y = \frac{N_{\beta}N_{\gamma}}{N_c}, \text{ а } X = \frac{1 - \varepsilon_{\beta}}{\varepsilon_{\beta}} \quad (3.105)$$

то функцию $Y(X)$ можно аппроксимировать полиномом n -й степени

$$Y(X) = A + BX + CX^2 + \dots \quad (3.106)$$

Очевидно, что при $X \rightarrow 0$, т.е. $\varepsilon_{\beta} \rightarrow 1$, $Y(X) = A$. Экстраполяционную кривую строят (т.е. находят коэффициенты A , B и C) методом наименьших квадратов по экстраполяционным точкам. Обычно ограничиваются полиномом 2-й степени. Выбор зависимости (линейная или квадратичная) определяется критерием χ^2 . В применении к данному случаю χ^2 рассчитывают по формуле

$$\chi^2 = \frac{1}{\nu} \sum_{i=1}^n \left[\frac{Y_i - Y_i(X_i)}{S_{0i}} \right]^2 \quad (3.107)$$

где Y_i - результат i -го измерения $Y_i = I_{\beta i}I_{\gamma i} / I_{ci}$, соответствующий значению X_i определяемому по формуле $X_i = (1 - \varepsilon_{\beta i}) / \varepsilon_{\beta i}$,

где ε_{β} приближенно определяется как

$$\varepsilon_{\beta i} \approx \frac{I_{ci}}{I_{\gamma i}} \quad (3.108)$$

$Y_i(X_i)$ - значение Y , соответствующее X_i из построенной экстраполяционной зависимости;

S_{0i} - СКО i -го измерения;

ν — число степеней свободы ($\nu = n - 2$ для линейной зависимости);
 n - число экспериментальных точек, взятых для построения кривой.

Выбирают тип зависимости, который соответствует меньшим значениям χ^2 .

Для построения экстраполяционной кривой измерения методом совпадений проводят при различных значениях эффективности регистрации излучения ε_β в 4 π -счетчике. Изменять значения ε_β можно тремя путями:

1. изменением массы активного слоя (изменением «самопоглощения»);
2. наложением на источник пленок или фольги;
3. изменением уровня дискриминации в бета-канале (или изменением напряжения на 4 π -счетчике).

Наиболее предпочтительными являются 2-й и 3-й пути, хотя в отдельных случаях был успешно применен так называемый метод «мокрой экстраполяции», при котором в счетчике находится не до конца высушенный источник и по мере его высыхания эффективность регистрации бета-излучения увеличивается. Очень важно добиваться максимальных значений ε_β , чтобы экстраполяцию проводить на меньших участках.

Экстраполяционный метод является основным методом измерения активности радионуклидов со сложными схемами распада. Однако именно в этих случаях может возникнуть систематическая погрешность при экстраполяции, так как распад таких радионуклидов может сопровождаться испусканием нескольких групп бета-частиц с различными граничными энергиями. При этом распаде могут присутствовать также электроны Оже, конверсионные электроны, низкоэнергетическое рентгеновское излучение и т.д. При уменьшении эффективности ε_β одним из вышеперечисленных способов будут изменяться спектр и состав излучения, регистрируемого в 4 π -счетчике, т.е. будут исключаться из совпадений целые группы частиц или фотонов.

Две причины возникновения систематической погрешности при проведении экстраполяции:

1. неоднозначность физических процессов, происходящих в 4 π -счетчике при искусственном уменьшении эффективности регистрации;
2. возможность того, что функция экстраполяции в виде полинома n -й степени подобрана неточно, либо она вообще не подходит в данном случае.

Для уменьшения этой погрешности необходимо стремиться (там, где это возможно) к достижению высокой первоначальной эффективности регистрации в бета-канале. Кроме того, необходимо подбирать такие условия измерений, чтобы порядок полинома был наименьшим, в идеальном случае добиваться линейной зависимости. С этой целью в гамма-канале устанавливают с помощью анализатора импульсов определенное энергетическое «окно» и измеряют число совпадений с гамма-фотонами выбранной энергии - в зависимости от схемы распада. Иногда работают в режиме «мультигамма», т.е. одновременно измеряют число совпадений с гамма-фотонами различных энергий. В этом случае строят несколько зависимостей $Y(X)$, которые в идеальном случае при экстра-

полюции ($X \rightarrow 0$) сходятся в одну точку, т.е. дают одно и то же значение активности. Однако добиться этого возможно не всегда, поэтому для каждого радионуклида выбирают определенные условия измерений.

3.3. Метод ионизационной камеры

Активность нуклида может быть определена с помощью ионизационной камеры по измеренному значению ионизационного тока, создаваемого в камере действием излучения измеряемого источника, с учетом эффективности камеры. Эффективность камеры вычисляют, исходя из спектрометрических данных об энергии излучения радионуклида и о степени поглощения излучения в ионизационной камере.

Наиболее простой случай представляет измерение активности нуклидов, излучение которых полностью поглощается в газе ионизационной камеры. К ним относятся α -излучающие нуклиды. В этом случае активность нуклида определяют по формуле

$$A = \frac{Iw}{E_{\alpha}e} \quad (3.109)$$

где I — ионизационный ток в камере; E_{α} — энергия α -частиц; w — средняя энергия ионообразования для α -частиц в данном газе; e — заряд электрона.

Значение w для воздуха заметно меняется в зависимости от энергии α -частиц и почти не зависит от энергии частиц для инертных газов. Значения E_{α} для различных радионуклидов определены методами ядерной спектроскопии с высокой точностью, однако энергии α -частиц, испускаемых каждым отдельным источником, могут заметно отличаться от табличных значений из-за влияния самопоглощения. Если при измерениях активности с помощью счетчиков только полностью поглощенные в источнике частицы не вносят вклада в измеряемую скорость счета, то при измерениях с помощью ионизационных камер даже частичное поглощение, т. е. уменьшение энергии частиц, заметно сказывается на результате измерений, уменьшая ионизационный ток. Поэтому при прочих равных условиях результаты измерений с токовыми ионизационными камерами менее точны, чем со счетчиками.

Метод токовой ионизационной камеры использовался для измерений активности α -излучающих нуклидов на ранней стадии исследований радиоактивности. Используется он иногда и в настоящее время — для измерения активности нуклидов в источниках с небольшой толщиной активного слоя и высокой удельной активностью, например, в источниках из плутония в диапазоне $10^4 - 10^7$ расп./сек.

Данный метод может быть применен и для измерений активности β -излучателей с малой энергией излучения, при которой пробеги β -частиц полностью заканчиваются в газе ионизационной камеры. Активность нуклида при этом вычисляют по формуле, аналогичной формуле (3.109), но отличающейся от нее тем, что вместо энергии α -частиц E_{α} берут среднюю энергию β -частиц

E_β . Вместе с тем значения E_β для многих нуклидов определены со сравнительно невысокой точностью, что ограничивает и общую точность результатов измерений активности, а сказанное выше о влиянии самопоглощения полностью и в еще большей степени относится и к данному случаю.

Для абсолютного измерения активности «чистых» β -излучателей, т. е. β -нуклидов, не испускающих γ -излучения, можно применять метод, предложенный впервые Греем для измерения средних энергий β -спектров. Измеряемый нуклид вводят внутрь *стенок* «наперстковой» ионизационной камеры, соответствующей условиям Брегга — Грея. Согласно теории Брегга — Грея, если β -нуклид равномерно распределен в плотной однородной среде, внутри которой имеется полость, заполненная газом, то при наличии в полости электрического поля через нее будет протекать ток, обусловленный ионизацией газа β -частицами и вторичными электронами. При этом, если размеры полости невелики по сравнению с пробегами электронов и β -частиц в наполняющем ее газе, то сила тока в полости

$$I = \frac{A \bar{E}_\beta}{m} \cdot \frac{S_g}{S_m} \cdot \frac{V \rho}{w} e \quad (3.110)$$

где m — масса среды, в которой распределен нуклид активностью A ; S_g/S_m — отношение тормозных способностей газа и среды для электронов; ρ — плотность газа в полости; V — объем полости.

Грей вводил в стенки камеры радионуклид известной активности и по измеренному ионизационному току определял среднюю энергию β -частиц. Если эта энергия известна из спектроскопических данных, то активность нуклида определяется соотношением

$$A = \frac{I \cdot m}{\bar{E}_\beta e} \cdot \frac{S_m}{S_g} \cdot \frac{w}{V \rho} \quad (3.111)$$

Как следует из сказанного, данный метод не пригоден для измерения активности нуклидов в «твердых» источниках β -излучения, но вполне подходит для измерения активности нуклидов в растворах и в порошках. Достоинством метода является отсутствие необходимости учитывать самопоглощение и поглощение излучения. В то же время из-за большого числа величин в формуле (3.111), определяемых со сравнительно невысокой точностью, погрешность определения активности данным методом получается довольно значительной, вследствие чего он не может конкурировать с методом 4π -счета. Некоторым неудобством является и необходимость изготовления новой камеры для каждого отдельного измерения. Может быть применена и другая методика измерений, также основанная на принципе Брегга — Грея и заключающаяся в введении измеряемого нуклида в жидкость и в измерении ионизационного тока, протекающего через тонкий слой воздуха между поверхностью жидкости и расположенным параллельно ей плоским электродом.

Для измерения активности нуклидов по γ -излучению с помощью ионизационной камеры необходимо связать непосредственно измеряемую величину – ионизационный ток – с активностью нуклида. Это может быть сделано или непосредственно, если известна эффективность камеры, т.е. ионизационный ток, отнесенный к единице активности данного нуклида, или косвенно — по известному значению удельной γ -постоянной данного нуклида.

В последнем случае с помощью γ -дозиметра с ионизационной камерой измеряют мощность экспозиционной дозы \dot{X} γ -излучения источника на определенном расстоянии R от него, и активность нуклида определяют по формуле

$$A = \frac{\dot{X} R^2}{\Gamma} K_1 K_2 \quad (3.113)$$

где Γ – γ -постоянная нуклида; K_1, K_2 — поправочные множители, учитывающие соответственно отличие удельной γ -постоянной радионуклида от γ -постоянной источника (из-за самопоглощения и поглощения в оболочке источника) и зависимость показаний γ -дозиметра от энергии фотонов («ход с жесткостью»).

Измеряемый источник можно также сравнить с радиевым эталоном с помощью ионизационной камеры, стенки которой изготовлены из материала, эквивалентного воздуху. Активность нуклида в источнике определяют в этом случае из соотношения

$$A = \frac{I_x}{I_{Ra}} \cdot \frac{\Gamma_{Ra}}{\Gamma_x} M_{Ra} K \quad (3.114)$$

где I_x, I_{Ra} — ионизационные токи, создаваемые в камере γ -излучением измеряемого источника и радиевого эталона; Γ_x, Γ_{Ra} – γ -постоянные измеряемого нуклида и радия; M_{Ra} — масса радия в радиевом эталоне; K — поправка на самопоглощение.

Таким образом, обе описанные методики измерений не являются независимыми и опираются на эталоны других единиц ионизирующих излучений — экспозиционной дозы и массы радия. Очевидно, что эти методы не могут служить основой создания эталона единицы активности γ -излучающих нуклидов. Поэтому в качестве эталонного устройства, воспроизводящего единицу активности нуклидов по γ -излучению ионизационным методом, может быть использована только ионизационная камера, для которой возможно теоретически рассчитать эффективность.

К числу таких камер относятся так называемые наперстковые, или полостные, камеры, эффективность которых рассчитывают по теории Брегга - Грея. В основу теории положено допущение о том, что небольшая газовая полость внутри твердого вещества не вносит искажения в распределение вторичных электронов, образованных γ -излучением в твердом веществе. При этом согласно формуле Брегга — Грея существует определенная зависимость между интенсивностью γ -излучения и числом пар ионов в единице объема газовой полости

$$q = \frac{J}{\rho w} (\tau + \sigma_{\beta} + k') \quad (3.115)$$

где J — энергия γ -излучения, попадающая в единицу времени на единицу площади; τ , σ_{β} , k' — линейные коэффициенты **поглощения** γ -излучения при фотоэффекте, комптоновском рассеянии и образовании пар; ρ — отношение тормозных способностей твердого вещества и газа для электронов.

Обычно газом, наполняющим полость в твердом веществе, является воздух. Если известна схема распада измеряемого нуклида и данные о спектре его γ -излучения (энергии фотонов и их число на акт распада), то может быть вычислен ионизационный ток, создаваемый в камере γ -излучением источника данного нуклида единичной активности, или эффективность камеры

$$j = \left[\sum_i n_i h \nu_i \left(\tau + \sigma_{\beta} + k \frac{h \nu - 2mc^2}{h \nu} \right)_i \right] \frac{e}{\rho w} G(r_0) \quad (3.116)$$

где n_i — число фотонов с энергией $h\nu_i$, испускаемых в среднем в одном акте распада нуклида; $G(r_0)$ — геометрический множитель.

Измерив ионизационный ток и поделив его значение на эффективность камеры, определяют активность нуклида в измеряемом источнике

$$A = \frac{I}{j} K_1 K_2 \quad (3.117)$$

где K_1 — поправочный множитель, приводящий значение тока в камере к нормальным давлению и температуре воздуха (760 мм рт. ст. и 0°C); K_2 — поправочный множитель, учитывающий поглощение γ -излучения в источнике (самопоглощение).

Наперстковые камеры вследствие малых размеров дают незначительный ионизационный ток и пригодны лишь для измерения сравнительно больших активностей нуклидов. От этого недостатка свободны так называемые **щелевые камеры**, объем которых достигает сотен и тысяч кубических сантиметров. Обычная щелевая камера представляет собой две параллельные пластины из воздухоэквивалентного вещества или легкого металла (например, алюминия), разделенные небольшим воздушным промежутком. Между пластинами расположен измерительный электрод в виде легкой рамки, на которую натянута тонкая металлизированная пленка или алюминиевая фольга.

Эффективность щелевой ионизационной камеры со стенками из легкого вещества вычисляют по теории Брегга – Грея точно так же, как и эффективность наперстковой камеры.

Щелевая ионизационная камера со стенками даже из такого тяжелого вещества, как свинец, дает возможность измерять активность γ -излучающих нуклидов. Вычисленные значения эффективности камер совпали в пределах погрешности с экспериментальными, полученными при измерениях тока в камере от источников из различных нуклидов, активность которых была измерена другим абсолютным методом (совпадений).

Некоторую неточность в результат измерений активности нуклидов с помощью наперстковых и щелевых камер вносит геометрический множитель.

$$G(r_0) = \frac{1}{V} \int_V \frac{dV}{r^2} \quad (3.118)$$

где V — ионизационный объем камеры; r — расстояние между источником и элементом объема; r_0 — расстояние между источником и центром объема камеры.

В *сферической ионизационной щелевой камере* необходимость вычисления геометрического множителя исключается тем, что в камере используется излучение источника в полном телесном угле 4π . Камера состоит из двух concentрически расположенных алюминиевых шаров, пространство между которыми служит ионизационным объемом. Источник помещен в центре внутреннего шара. Число пар ионов, создаваемых γ -излучением источника в этой камере, определяется по формуле

$$Q = \left[\sum_i n_i h \nu_i \left(\tau + \sigma_\beta + k \frac{h\nu - 2mc^2}{h\nu} \right)_i e^{-\mu_i d} \right] \eta \frac{D}{\rho w} \quad (3.119)$$

где μ , — линейный коэффициент ослабления γ -излучения в алюминии; η — доля энергии вторичных электронов, затрачиваемая на ионизацию,

$$\eta = \frac{(\partial E / \partial x)_{\text{ион}}}{(\partial E / \partial x)_{\text{ион}} + (\partial E / \partial x)_{\text{рад}}} \quad (3.120)$$

d — толщина стенки внутреннего шара; D — расстояние между внутренним и наружным шарами.

Нижний предел активности, измеряемой с помощью щелевой ионизационной камеры, определяется уровнем фона камеры и чувствительностью применяемого электрометрического устройства, а также энергией γ -излучения измеряемого нуклида. Для ^{60}Co нижним пределом измерений является $3,7 \cdot 10^6$ расп./сек. Верхний предел практически ограничен только необходимостью обеспечить режим насыщения в ионизационной камере и соответствующими защитными приспособлениями для создания безопасных условий работы с источниками γ -излучения.

Погрешность воспроизведения единицы активности γ -излучающих нуклидов методом полостной или щелевой ионизационной камеры складывается из случайной погрешности измерения ионизационного тока и из погрешностей, которые следует отнести к систематическим, — определения эффективности камеры и поправочных множителей. При использовании соответствующих средств измерений погрешность измерения ионизационного тока может быть доведена до 0,1–0,2%. Погрешность значения эффективности камеры, как расчетной величины, не может быть определена вполне точно, так как величины, входящие в формулу (3.120), известны из опубликованных в литературе данных с больши-

ми или меньшими погрешностями, не всегда точно определенными авторами соответствующих работ. Это относится, в частности, к данным о составе спектров γ -излучения измеряемых нуклидов. Значение средней энергии ионообразования известно с погрешностью около 1%. С примерно такими же погрешностями известны и остальные величины, входящие в формулу (3.120). Таким образом, общая погрешность значения эффективности камеры для ^{60}Co составляет 2 - 3%.

Определение поправки на самопоглощение также сопряжено с существенной погрешностью. По-видимому, погрешности этих поправок не меньше 5%. Более точно поправки могут быть определены экспериментально, применительно к конкретным условиям измерения. Об определении такой поправки для сферической щелевой камеры будет сказано при описании соответствующей эталонной установки.

Из-за сравнительно большой погрешности ионизационную камеру нецелесообразно применять для воспроизведения единицы активности γ -излучающих нуклидов в диапазоне выше 10^9 — 10^{10} *расп./сек*, где можно применять более точный метод— калориметрический; ионизационная камера же применяется для этой цели в диапазоне, промежуточном между диапазонами, охватываемыми методом совпадений и калориметрическим, т. е. от 10^6 до 10^9 *расп./сек*.

Эталонная установка УЭА-4. Эталонная установка УЭА-4 служит для воспроизведения единицы активности γ -излучающих нуклидов в диапазоне от $3 \cdot 10^6$ — $3 \cdot 10^7$ *расп./сек* (в зависимости от вида нуклида) до $3 \cdot 10^9$ *расп./сек* методом измерения ионизации, создаваемой γ -излучением источника в ионизационной камере, и для передачи размера единицы вторичным эталонам в тех же пределах. Эта установка служит также для сличения эталонов единицы массы радия.

Описание установки

Эталонная установка УЭА-4, общий вид которой представлен на рис. 3.36, имеет два стенда: на одном из них размещаются две ионизационные камеры и электрометрическое устройство, на другом – источники питания (стабилизированные выпрямители).

Одна из ионизационных камер предназначена для сличения радиевых эталонов. Другая камера предназначена для воспроизведения единицы активности γ -излучающих нуклидов и является разновидностью щелевых камер, но в отличие от обычно применяемых камер такого рода охватывает излучение источника в телесном угле 4π . Камера состоит из двух концентрически расположенных алюминиевых сфер со стенками толщиной 5 мм. Наружные радиусы этих сфер 114,90 и 129,84 мм.

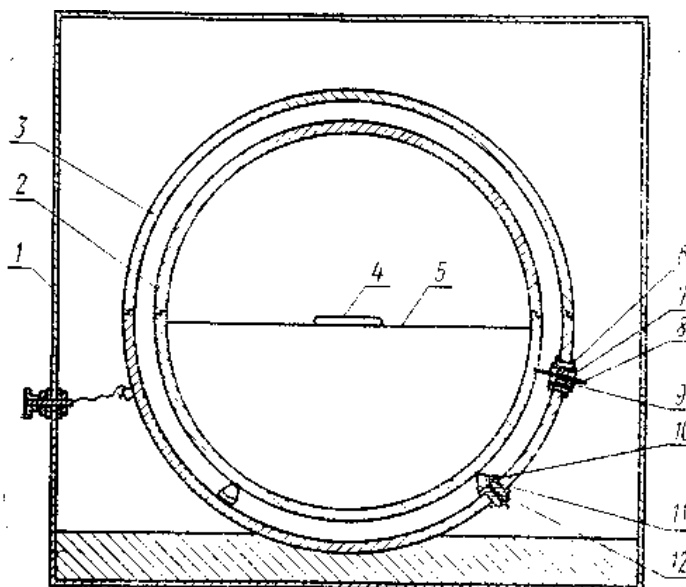


Рис. 3.36. Сферическая ионизационная камера эталонной установки УЭА-4 (в разрезе): 1 – наружный экран; 2 – внутренняя сфера (собирающий электрод); 3 – наружная сфера (потенциальный электрод); 4 – источник; 5 – площадка для источника; 6, 9, 10, 12 – изоляторы; 7, 11 – охранные кольца; 12 – вывод собирающего электрода

Внутренняя сфера опирается на три изолятора из янтаря, находящиеся в охранных втулках, укрепленных на стенке наружной сферы. Наружная сфера служит потенциальным электродом, внутренняя является собирающим электродом. С помощью электрометрического устройства по компенсационной схеме Таунсенда измеряется ионизация, создающаяся в пространстве между сферами под действием γ -излучения источника, помещенного в центре камеры. В электрометрическом устройстве использованы следующие основные средства измерений:

- а) квадрантный электрометр чувствительностью около 1000 мВ , при расстоянии до шкалы $1,5 \text{ м}$;
- б) набор конденсаторов постоянной емкости от 50 до 4000 нФ , сопротивление изоляции (из янтаря или полистирола) порядка 10^{14} Ом ;
- в) вольтметр постоянного тока класса $0,1$ с пределами измерения от $0,03$ до 300 В ;
- г) секундомер с ценой деления $0,1 \text{ сек}$.

Потенциал на ионизационную камеру ($\sim 1000 \text{ в}$) подается от стабилизированного выпрямителя, аналогичного высоковольтным выпрямителям в эталонных установках УЭА-1, УЭА-2 и УЭА-3. Компенсационная схема питается от стабилизированного выпрямителя, дающего два напряжения: $0\text{—}400 \text{ В}$ (потенциал на электрометр) и $20\text{—}600 \text{ В}$ (потенциал на делитель напряжения).

Методика измерения активности нуклидов. Активность γ -излучающего нуклида в источнике, помещенном в ионизационную камеру эталонной установки УЭА-4, определяют по измеренному значению ионизационного тока I , приведенному к нормальным условиям (давлению воздуха 760 мм рт. ст. и темпера-

туре 0°С), и по эффективности камеры с учетом поправок на поглощение γ -излучения в источнике и в его оболочке

$$A = \frac{I}{j} K_1 K_2 K_3 \quad (3.121)$$

где j — эффективность камеры (ионизационный ток, отнесенный к единице активности нуклида); K_1 — коэффициент приведения значения ионизационного тока к нормальным условиям; K_2 и K_3 — поправки на поглощение излучения в источнике и в его оболочке.

Эффективность камеры для нуклида, излучающего в одном акте распада среднее число a_i , фотонов энергией E_i , вычисляют по формуле, полученной на основе теории Брегга — Грея,

$$j = \left[\sum_i a_i E_i \left(\tau + \sigma_\beta + k \frac{h\nu - 2mc^2}{h\nu} \right)_i e^{-\mu_i d} \eta_i \right] \frac{De}{\rho w} \quad (3.122)$$

где τ , σ_β и k — линейные коэффициенты поглощения γ -излучения при фотоэффекте, комптоновском рассеянии и образовании пар соответственно; μ — линейный коэффициент ослабления γ -излучения в алюминии; d — толщина стенки внутренней сферы камеры; D — расстояние между поверхностями сфер; w — средняя энергия новообразования; ρ — отношение тормозных способностей алюминия и воздуха для электронов, отнесенное к единице объема; mc^2 — энергия покоя электрона; η — доля энергии электронов, затрачиваемая на ионизацию.

Суммирование ведется по всем линиям γ -спектра.

В табл. 3.12 даны значения эффективности камеры эталонной установки УЭА-4 для различных нуклидов, вычисленные по формуле (3.122), а также полученные путем измерения ионизации от источников, для которых активность нуклидов была измерена калориметрическим методом с помощью эталонной установки УЭА-5. Как видно из приведенных данных, расхождения, расчетных значений эффективности камеры и экспериментальных не выходят за пределы погрешности расчета и измерений.

Таблица 3.12

Эффективность камеры эталонной установки УЭА-4 для различных нуклидов

| Нуклид | Значения эффективности, $j \cdot 10^{-19} \frac{a}{\text{расп.сек}}$ | | Расхождение % |
|-------------------|---|-------------------|------------------|
| | расчетные | экспериментальные | |
| ^{60}Co | 4,07 | 4,19 | 3 |
| ^{114}In | 0,193 | — | — |
| ^{124}Sb | 4,22 | — | — |
| ^{137}Cs | 1,080 | 1,05 | 3 |
| ^{226}Ra | 3,10 | 3,18 | 2,6 |

Поправочный множитель

$$K_1 = \frac{760}{p} \cdot \frac{t + 273,1}{273,1} \quad (3.123)$$

где p и t — давление воздуха (в мм рт. ст.) и его температура (в °С) во время измерения.

Поправки на поглощение γ -излучения в источнике («самопоглощение») обычно определяют расчетным путем. Однако традиционные расчетные формулы выведены при ряде упрощающих предположений, в результате чего точность вычисляемых поправок оценить не представляется возможным. Так, при подобных расчетах предполагается, что радиоактивное вещество распределено по объему источника равномерно, тогда как в действительности это не всегда так. Например, в γ -источниках из ^{60}Co , наиболее применяемых в настоящее время, активность нуклида в поверхностных слоях значительно больше, чем в глубинных. Это обусловлено большим сечением захвата и активации кобальта нейтронами (соответствующие значения равны 40 и 34,1 барн), в результате чего при облучении источника в реакторе возникает эффект «самоэкранирования», существование которого доказано и экспериментально. Кроме того, все расчетные формулы для определения влияния самопоглощения дают возможность определить только уменьшение числа фотонов вследствие их поглощения внутри источника, т. е. дают отношение числа фотонов, испускаемых источником, к полному числу фотонов, испускаемых радиоактивными ядрами. При этом не учитывается, что энергия фотонов, претерпевших комптоновское рассеяние, отлична от энергии первичных фотонов; между тем эффективность ионизационной камеры существенно зависит от энергии фотонов. Наконец, почти все расчетные формулы применимы только к условиям использования излучения в одном определенном направлении, тогда как точные измерения активности нуклидов в γ -источниках проводят в геометрии полного телесного угла 4π .

Не исключено, что в ряде случаев более точные оценки самопоглощения могут быть сделаны при численных расчетах методом Монте-Карло. Однако в литературе отсутствуют данные по использованию расчетов такого типа.

Более надежные и точные значения поправок на самопоглощение для γ -источников может дать их экспериментальное определение. Для γ -источников из ^{60}Co эти поправки определены во ВНИИМ путем сопоставления результатов ионизационных и калориметрических измерений интенсивности γ -излучения источников цилиндрической формы разных размеров. С помощью ионизационной камеры эталонной установки УЭА-4 были измерены ионизационные токи, а с помощью γ -калориметров эталонной установки УЭА-5 – тепловые эффекты, создаваемые γ -излучением указанных источников. Значения ионизационных токов пропорциональны внешнему излучению источников, а тепловые эффекты — полному излучению источников и, следовательно, активности нуклида, поэтому сопоставление этих данных позволило определить поправочные множители для учета влияния самопоглощения в источниках.

Поправку на поглощение излучения в оболочке источника вычисляют по формуле

$$K_3 \approx e^{\mu h} \quad (3.124)$$

где μ — линейный коэффициент ослабления γ -излучения в материале оболочки источника; h — толщина оболочки источника.

Относительная погрешность расчетного значения эффективности ионизационной камеры для ^{60}Co , соответствующая доверительной вероятности 0,99, равна 2%. Погрешность определения коэффициента K_2 лежит в пределах 0,5 – 1,0 %. Погрешность определения коэффициента K_1 оказывает пренебрежимо малое влияние на общую погрешность измерений.

Значение ионизационного тока в камере эталонной установки УЭА-4 может быть измерено с относительным средним квадратическим отклонением 0,25%. Погрешность поправочного множителя K_3 для источника из ^{60}Co , имеющего оболочку из нержавеющей стали толщиной 1 мм, не превышает 0,4%. Таким образом, относительная погрешность воспроизведения единицы активности ^{60}Co на эталонной установке УЭА-4, соответствующая доверительной вероятности 0,99, равна 4%.

Основной вклад в указанную погрешность вносит погрешность расчетного значения эффективности камеры, которая, в свою очередь, зависит, прежде всего, от погрешностей значений средней энергии ионообразования и отношения тормозных способностей алюминия и воздуха. Таким образом, для повышения точности воспроизведения единицы активности нуклидов методом ионизационной камеры необходимо более точно знать обе упомянутые ядерно-физические характеристики.

3.4. Калориметрический метод.

Принцип данного метода измерения заключается в том, что энергия, выделяющаяся при распаде нуклида, полностью или частично поглощается в калориметре, результатом чего является повышение его температуры, измеряемое с

помощью соответствующих средств. Количество тепла Q , выделившееся в калориметре за некоторое время t , связано с активностью нуклида соотношением

$$A = \frac{Q}{pEt} \quad (3.125)$$

где E — энергия, выделяющаяся в одном акте распада нуклида; p — степень поглощения энергии в калориметре.

При α -распаде ядра на основной невозбужденный уровень энергия распада складывается из двух компонентов: кинетической энергии ядра отдачи и энергии α -частицы. Обе составляющие полностью поглощаются в калориметре и переходят в эквивалентное количество тепла; таким образом, в этом случае $p=1$.

При β -распаде, не сопровождающемся γ -излучением, энергия распада распределяется между ядром отдачи, β -частицей и нейтрино. Первая из этих составляющих, вследствие большого различия между массами ядра и β -частицы, пренебрежимо мала; последняя полностью уходит из калориметра вместе с ее носителем — нейтрино. Таким образом, в тепло переходит лишь энергия β -частицы. Она имеет непрерывный спектр, простирающийся от нуля до максимального для данного нуклида значения. При достаточно большом числе β -частиц, т. е. при достаточно большой активности нуклида, можно полагать, что каждая частица обладает средней энергией E_β , значение которой определяется по данным ядерной спектроскопии. Для полного поглощения β -частиц достаточно сравнительно небольшого поглощающего слоя; таким образом, в случае β -распада, не сопровождаемого γ -излучением, $p=1$, как и в случае α -распада. При измерении активности β -излучающих нуклидов необходимо учитывать потери энергии на тормозное излучение, частично уходящее из калориметра, и вводить в результат измерения соответствующую поправку.

Если α - или β -распад сопровождается γ -излучением, в формулу (3.125) вводят дополнительные члены, учитывающие поглощение γ -излучения в стенках калориметра,

$$A = \frac{W}{p_\alpha E_\alpha + p_\gamma E_\gamma}; \quad (3.126)$$

$$A = \frac{W}{p_\beta \bar{E}_\beta + p_\gamma E_\gamma}$$

где $W = Q/t$ — тепловая мощность, выделяющаяся в калориметре.

Калориметры для измерения активности α -излучающих нуклидов имеют весьма тонкие стенки, толщина которых соответствует длине пробега α -частиц в данном материале. Поглощение γ -излучения в такой стенке пренебрежимо мало, поэтому значение p_γ в формуле (30) можно считать равным нулю. Толщина поглощающего слоя β -калориметров в зависимости от максимальной энергии β -частиц меняется от долей миллиметра до нескольких миллиметров. В по-

следнем случае поглощением γ -излучения в стенке калориметра пренебрегать уже нельзя, однако значение p_γ в формуле (3.126) все же значительно меньше единицы.

Калориметры, предназначенные для измерения активности нуклидов по γ -излучению, должны иметь поглощающий слой значительной толщины. Чем толще слой, тем сильнее поглощается γ -излучение и, следовательно, тем больше количество тепла, выделяющееся в калориметре; увеличивается и значение p , приближаясь к единице, благодаря чему уменьшается влияние неточности определения p на результат измерений активности. С другой стороны, увеличение толщины поглощающего слоя ведет к значительному увеличению массы калориметра и его теплоемкости, что приводит, как увидим ниже, к увеличению времени установления теплового равновесия. Поэтому на практике обычно ограничиваются значениями p от 0,7 до 0,9.

Формула для определения активности нуклида со сложным спектром γ -излучения имеет вид

$$A = \frac{W}{\bar{E}_\beta + \sum_i h\nu_i n_i p_i} \quad (3.127)$$

Как видно из приведенных выше формул, активность нуклида при измерении калориметрическим методом определяется только по величинам, характеризующим свойства измеряемого нуклида и зависящим от конструкции калориметра. Геометрические и радиометрические параметры измеряемого источника — объем, толщина или протяженность активной области, удельная активность и т. п. — в формулы для определения активности не входят. Благодаря этому отпадает необходимость учета таких трудно определяемых поправок, как поправки на самопоглощение, рассеяние и др.

При измерении активности нуклидов калориметрическим методом несущественны и такие величины, характеризующие взаимодействие излучения с веществом, как отношение тормозных способностей твердого вещества и воздуха, средняя энергия ионообразования и некоторые другие. Вследствие этого калориметрический метод превосходит по точности многие другие методы измерения активности нуклидов, в частности ионизационный, хотя и уступает ему по чувствительности. Следует иметь в виду, что калориметрический метод неприемлем для измерения активности нуклидов в источниках, в которых происходят какие-либо процессы, приводящие к изменению их температуры.

Уравнение теплового баланса в калориметре, в котором находится измеряемый источник, имеет вид

$$Pdt = cdt + HS(T - T_0)dt \quad (3.128)$$

где P — мощность источника тепла; T — температура калориметра; T_0 — температура окружающей среды; S — поверхность калориметра; H — коэффициент теплоотдачи; c — теплоемкость калориметра.

Если принять, что в начальный момент времени $t=0$ температура калориметра равна температуре окружающей среды, т. е. $T = T_0$, то решение уравнения будет иметь вид

$$T - T_0 = \frac{P}{HS} \left(1 - e^{-\frac{HSt}{c}} \right) \quad (3.129)$$

или при $t \rightarrow \infty$

$$T - T_0 = \frac{P}{HS} \quad (3.130)$$

Таким образом, с течением времени разность температур между калориметром и окружающей средой становится постоянной и зависящей только от мощности источника тепла, в данном случае от активности нуклида в измеряемом источнике и от конструктивных параметров калориметра H и S , которые должны быть возможно меньшими для получения максимальной чувствительности. С другой стороны, для уменьшения времени установления теплового равновесия выгодно уменьшать теплоемкость калориметра c . Таким образом, калориметр должен иметь минимальные из возможных размеры, и поверхность его должна быть посеребрена и отполирована.

Калориметры градуируют с помощью нагревательных катушек, помещенных вместо радиоактивного источника. Тепловую мощность, выделяемую электрическим током, проходящим через катушку, определяют по силе тока и по сопротивлению катушки, которые можно измерить с высокой точностью.

По конструктивному оформлению и по методике измерений существующие калориметры для измерения активности нуклидов могут быть разделены на четыре основные типа:

а) изотермические калориметры, в которых тепло, выделяющееся в результате поглощения излучения, идет на нагревание поглотителя. К калориметрам этого типа относятся калориметры с жидким азотом; в них поглотителем является или сам жидкий азот, заключенный в сосуд Дьюара (калориметры для α - и β -излучения), или специальный поглотитель из свинца либо вольфрама, погруженный в жидкий азот. Тепло, выделяющееся при поглощении излучения, идет на испарение азота; объем выделяющегося в единицу времени газообразного азота, измеренный при определенных давлении и температуре, является мерой активности нуклида в источнике. Этот тип калориметра из-за сложности конструктивного выполнения и процедуры измерений не получил широкого практического применения;

б) адиабатический калориметр, в котором температура среды, окружающей поглотитель, поддерживается равной температуре поглотителя; благодаря этому предотвращается утечка тепла из калориметра. Существуют полностью автоматизированные адиабатические калориметры. Адиабатические калориметры являются в настоящее время одними из наиболее распространенных;

в) дифференциальный калориметр, состоящий из двух одинаковых поглотителей, в один из которых помещают измеряемый радиоактивный источник, в другой — нагревательную катушку. Если тепловая мощность, выделяемая током, проходящим через нагревательную катушку, будет равна тепловой мощности, получаемой поглотителем от радиоактивного источника, то гальванометр в цепи термопар, соединяющих оба поглотителя, не будет показывать отклонения. Дифференциальные калориметры также получили довольно широкое распространение;

г) радиационные весы, конструктивно похожие на дифференциальный калориметр, и отличающиеся от него тем, что вместо термопар в них использованы спаи Пельтье. При соответствующих направлении и силе тока, пропускаемого через спай Пельтье, находящийся в контакте с поглотителем, в котором помещен измеряемый радиоактивный источник, тепло, выделяющееся в поглотителе, компенсируется охлаждением спаи Пельтье, так что температура поглотителя остается постоянной и равной температуре окружающей среды; благодаря этому устраняется возможность утечек тепла. Наиболее точный прибор этого типа успешно применяется для измерения активности α - и β -излучателей и сравнения радиевых эталонов.

Погрешность калориметрического измерения активности нуклида складывается из нескольких составляющих:

- а) погрешностей тепловых измерений, т. е. измерений тепловой мощности, выделяющейся в калориметре; эти погрешности, относящиеся к категории случайных, составляют обычно несколько десятых процента при условии постоянства температуры в помещении, где расположена калориметрическая установка;
- б) погрешностей определения энергии излучения, относящихся в данном случае к категории систематических (значения энергии известны из данных ядерной спектроскопии с неодинаковой точностью для различных излучений и для различных нуклидов);
- в) погрешности определения коэффициента, учитывающего степень поглощения излучения в калориметре, в случае измерения активности нуклидов по γ -излучению. В зависимости от способа определения коэффициента поглощения эта погрешность может быть в пределах от долей процента до 2—3%.

Таким образом, полная погрешность калориметрических измерений активности нуклидов лежит в пределах от 0,2—0,5% для α -излучающих нуклидов до 1—3% для γ -излучающих нуклидов.

При измерении активности нуклидов, испускающих γ -излучение с малой и средней энергией фотонов — порядка десятков и сотен килоэлектронвольт, — необходимо учитывать также излучение, поглощенное в самом источнике, т. е. вводить поправку на самопоглощение.

Эталонная установка УЭА-5. Эталонная установка УЭА-5 служит для воспроизведения единицы активности нуклидов в γ -источниках и в α - и β -активных образцах калориметрическим методом в диапазонах от $3 \cdot 10^9$ до $2 \cdot 10^{11}$ расп./с для γ -излучающих нуклидов и от $3 \cdot 10^8$ — $1 \cdot 10^{10}$ до $3 \cdot 10^{11}$ — $3 \cdot 10^{12}$ расп./с для α - и β -излучающих нуклидов (в зависимости от вида нуклида), а также для передачи размера единицы вторичным эталонам в тех же пределах. Установку применяют и для сличения эталонов единицы массы радия

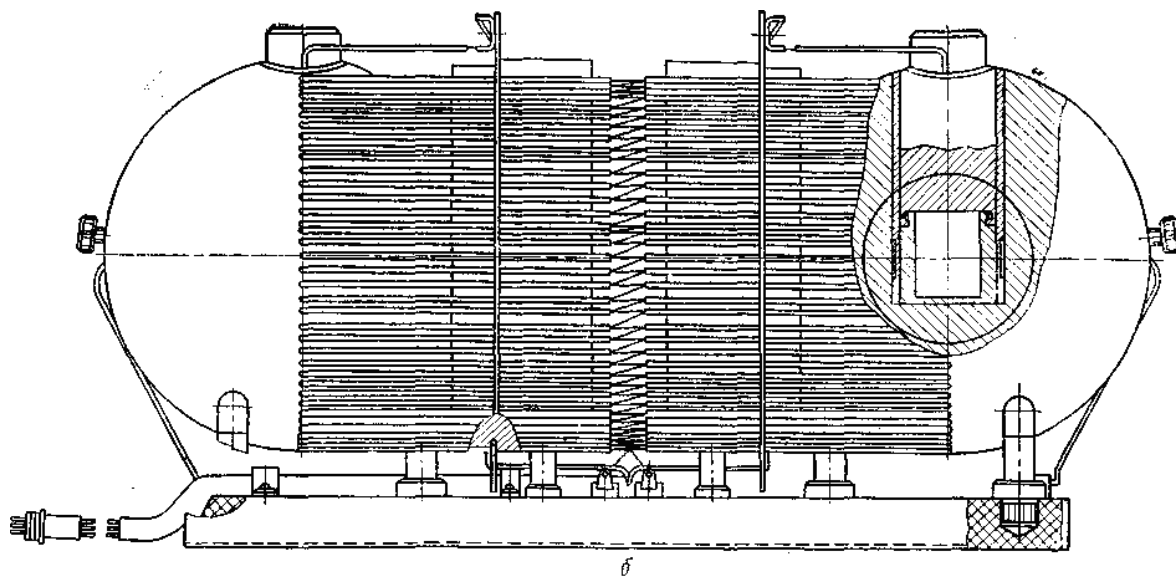
Описание установки. Основными элементами эталонной установки УЭА-5 являются дифференциальные статические калориметры: четыре калориметра для γ -излучения и три калориметра для α - и β -излучения.

Все γ -калориметры подобны по конструкции и отличаются друг от друга только размерами и материалом поглотителей, так как предназначены для измерения активности нуклидов с различным по энергиям фотонов γ -излучением. Каждый γ -калориметр состоит из двух одинаковых сферических поглотителей из свинца (калориметры ГК-1, ГК-2 и ГК-3) или вольфрама (калориметр ГК-4). Каждая пара поглотителей связана между собой системой термопар, спай которых расположены в небольших углублениях на поверхности поглотителей и изолированы от последних. В центре каждого поглотителя имеется цилиндрическая полость для измеряемого источника. Поверхности поглотителей позолочены и отполированы для уменьшения потерь на лучеиспускание. Поглотители установлены на термоизолирующих опорах внутри термостатирующих массивных медных блоков, помещенных в деревянных футлярах, выложенных изнутри войлоком. Основные характеристики γ -калориметров приведены в табл. 3.13.

Таблица 3.13

Основные характеристики γ -калориметров

| Калориметр | Диаметр поглотителя | Толщина поглощающего слоя | Диаметр полости | Длина полости | Масса поглотителя, г | Число термопар | Время установления теплового равновесия, " | Чувствительность калориметра, м.м./мет |
|------------|---------------------|---------------------------|-----------------|---------------|----------------------|----------------|--|--|
| | | | | | | | | |
| ГК-1 | 140 | 61,5 | 15 | 14 | 15826 | 50 | 20 | 76 |
| ГК-2 | 70 | 28,0 | 12,5 | 10,8 | 1885 | 48 | 6 | 149 |
| ГК-3 | 35 | 11,5 | 10,5 | 8,8 | 225 | 20 | 2,5 | 190 |
| ГК-4 | 125,4 | 61,1 | 2,5—20 | 3—30 | 18348 | 78 | 24 | 125,3 |



Калориметр для γ -излучения эталонной установки УЭА-5:
 а - внешний вид (поглотитель выдвинут из термостатирующего медного блока); б -
 разрез

Рис. 3.37

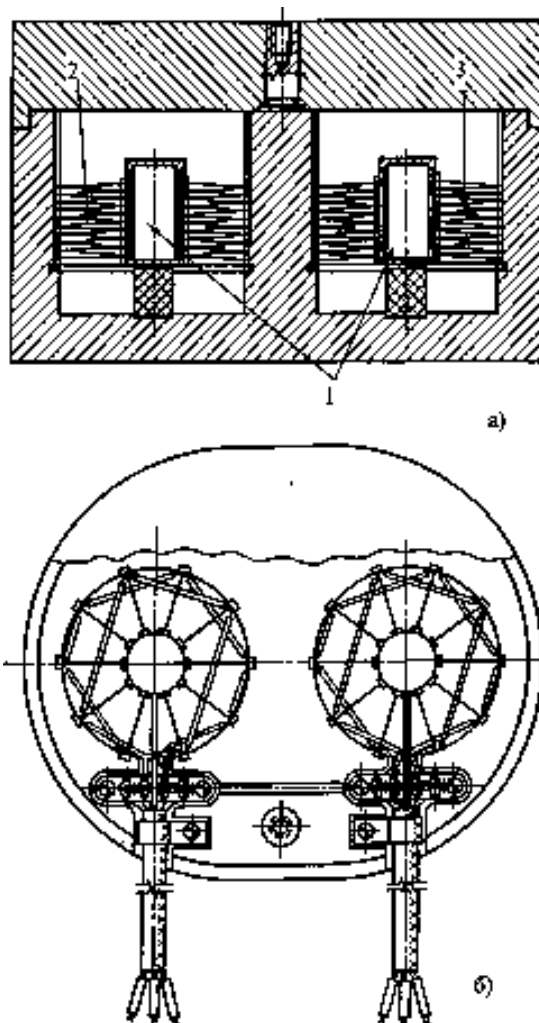


Рис. 3.38. Принципиальная схема дифференциального калориметрического детектора:
 а) - вид спереди, б) - вид сверху; 1 - медный стакан, 2 - термобатарея ТБ₁, 3 - термобатарея
 ТБ₃.

Излучение источника поглощается в поглотителе, благодаря чему он нагревается. Возникающую разность температур между поглотителями измеряют (после установления теплового равновесия) с помощью гальванометра, включенного в цепь термопар. Предварительно градуируют калориметр с помощью нагревательной катушки; такие катушки вмонтированы в полость каждого поглотителя. В результате градуировки получают графическую зависимость отклонения гальванометра в цепи термопар от тепловой мощности, выделяющейся в поглотителе. При измерении дифференциальным методом нагревание поглотителя, в котором находится источник, компенсируется равным по величине нагреванием второго поглотителя нагревательной катушкой, через которую пропускается ток соответствующей силы. В этом случае гальванометр в цепи термопар служит нулевым индикатором. Измеренная мощность, выделяемая током, проходящим через нагревательную катушку, определяет мощность излучения, поглощенную в калориметре.

Необходимо отметить, что условия выделения тепла в поглотителе от помещенного в него γ -источника (за счет поглощения излучения) и от нагревательной катушки существенно различны: в первом случае тепло выделяется во всем объеме поглотителя, хотя и не одинаково (с уменьшением по мере удаления от источника), во втором случае тепло выделяется только в месте расположения нагревательной катушки. Однако, как показывает теоретический анализ, это обстоятельство не приводит к ошибкам в измерении активности нуклидов, так как после установления теплового равновесия температура поверхности поглотителя определяется только мощностью находящегося в нем источника, независимо от того, какой это источник — «точечный» (нагревательная катушка) или «распределенный» (γ -источник). По этой причине спаи термопар следует располагать по возможности ближе к наружной поверхности поглотителей.

Степень поглощения γ -излучения в поглотителях определена расчетом и экспериментально. Для расчета использован способ численного интегрирования с учетом поглощения первичного, однократно и двукратно рассеянного излучения с поправкой на многократно рассеянное излучение. Этот расчет был выполнен также по методу Фано. Отклонения результатов находились в пределах 0,5%. В табл. 3.14 приведены коэффициенты, определяющие степень поглощения γ -излучения различных энергий в поглотителях.

Экспериментальная проверка определения поглощения γ -излучения в поглотителях выполнена с помощью термолюминесцентных детекторов. Сравнивали эффекты, возникавшие в детекторах под действием излучения, выходящего из поглотителя, в центре которого помещали источник ^{60}Co , и излучения того же, но незащищенного (т. е. открытого) источника. Измеренные значения коэффициента поглощения совпали с расчетными с точностью до третьей значащей цифры.

Таблица 3.14

Коэффициенты, определяющие степень поглощения γ -излучения различных энергий в калориметрах

| Калори-метр | Отношение поглощенной энергии к полной энергии γ -излучения для различных энергий фотонов, Мэв | | | | | | |
|-------------|---|-------|-------|-------|-------|-------|-------|
| | 0,511 | 0,800 | 1,17 | 1,33 | 1,70 | 2,20 | 2,80 |
| ГК-1 | — | — | 0,967 | 0,954 | 0,925 | 0,902 | 0,890 |
| ГК-2 | 0,984 | 0,882 | 0,760 | 0,723 | 0,667 | 0,635 | 0,627 |
| ГК-3 | 0,807 | 0,577 | 0,427 | 0,392 | 0,345 | — | — |
| ГК-4 | 1 | 1 | 0,993 | 0,989 | — | — | — |

Калориметры для α - и β -излучения, сконструированы в расчете на измерение активности нуклидов в источниках и образцах различных размеров и конфигураций. Каждый калориметр состоит из двух одинаковых медных цилиндров – поглотителей, поверхность которых позолочена и отполирована. Цилиндры установлены внутри массивных медных блоков. Каждый цилиндр снабжен термобатареей; верхние «горячие» спаи термопар входят в углубления в стенках цилиндров, нижние «холодные» спаи погружены в масло, налитое на дно полости в каждом медном блоке. Гальванометр в цепи термобатарей показывает разность температур цилиндров. Внутри каждого цилиндра помещена нагревательная катушка из манганиновой проволоки, используемая при градуировке калориметра (при измерении методом прямого отклонения) и при измерении дифференциальным методом. Блок с калориметрами помещен в герметичную латунную камеру, установленную в масляном термостате, температура которого поддерживается постоянной (отклонение не превышает $\pm 0,01^\circ\text{C}$).

Основные характеристики α - и β -калориметров приведены в табл. 3.15.

Таблица 3.15

Основные характеристики α - и β -калориметров

| Калори-метр | Цилиндр | | | Число термопар | Время установления теплового равновесия, мин | Чувствительность, мк/мквт |
|-------------|------------------|-------------------|----------------|----------------|--|---------------------------|
| | Наружный диаметр | Внутренняя высота | Толщина стенок | | | |
| | мм | | | | | |
| АК-1 | 7,2 | 45 | 0,8 | 16 | 30 | 1,406 |
| АК-2 | 15 | 30,8 | 1,1 | 24 | 80 | 0,990 |
| АК-3 | 35 | 4,7 | 1,0 | 24 | 85 | 0,516 |

Электроизмерительная часть установки содержит две независимые цепи — градуировочную и измерительную. С помощью системы переключателей в эти цепи вводят нагревательные катушки и термобатарей любого из семи калориметров.

Калориметры для γ - и для α - и β -излучений смонтированы на отдельных стендах, установленных в специальном помещении, изолированном от наружных

стен здания. Электроизмерительное устройство находится в соседнем помещении.

Методика измерений. Как уже говорилось выше, при измерении активности нуклидов калориметрическим методом с помощью данной эталонной установки можно применять и метод «прямого отклонения» с предварительной градуировкой калориметра нагревательной катушкой, и дифференциальный метод. В том и другом случае определяют тепловую мощность, выделяющуюся в калориметре в результате поглощения в нем излучения источника.

Активность нуклида в γ -источнике определяют по формуле

$$A = \frac{W}{\bar{E}_\beta + \sum_i h\nu_i n_i p_i} \quad (3.131)$$

где W — измеренная тепловая мощность, выделяющаяся в калориметре; $E_{\gamma i}$ и a_i — энергии фотонов и их среднее число на акт распада нуклида; \bar{E}_β — средняя энергия β -излучения нуклида; p_i — коэффициент для учета степени поглощения фотонов в калориметре.

Относительная погрешность измерения активности ^{60}Co , имеющего сравнительно простую схему распада и хорошо изученный спектральный состав излучения, оказывается $\sim 0,8\%$ при доверительной вероятности 0,99. Для нуклидов, имеющих более сложную схему распада и менее изученный спектр излучения, эта погрешность будет несколько выше.

Активность α - и β -излучающих нуклидов, измеряемая с помощью калориметров АК эталонной установки УЭА-5, определяют по формуле

$$A = \frac{W}{\bar{E}} \quad (3.132)$$

где \bar{E} — средняя энергия α -или β -излучения, выделяемая нуклидом в одном акте распада.

Как и при измерении активности γ -излучающих нуклидов, относительное среднее квадратическое отклонение среднего арифметического значения тепловой мощности, выделяющейся в калориметре (S_{0W}), составляет 0,3%. Значения средней энергии α - и β -частиц для различных нуклидов известны с весьма различными точностями: для α -частиц с погрешностью до 0,01 % и для β -частиц с погрешностями, достигающими до 5—10%. Поэтому при измерении активности α -излучающих нуклидов погрешностью значения энергии α -частиц обычно можно пренебречь и погрешность значения активности нуклида определять по значению S_{0W} , умноженному на коэффициент Стьюдента, соответствующий выбранной доверительной вероятности (для эталонных измерений следует пользоваться доверительной вероятностью не ниже 0,99). При измерении активности β -излучающих нуклидов следует учитывать систематическую погрешность, обусловленную неопределенностью значения средней энергии β -частиц.

3.5 Измерение активности толстослойного источника бета-излучения

В ряде случаев данный метод может быть использован как абсолютный метод измерения удельной активности радионуклидов (при условии учета всех поправок).

Общие сведения. При радиометрических измерениях или исследованиях, связанных с применением радиоактивных индикаторов возникает необходимость определить их удельную активность в веществе.

Удельная активность определяется по отношению общей активности образца к его массе. Обычно ее выражают в Бк/кг. Определить удельную активность можно, измерив абсолютную активность пробы и ее массу:

$$A_m = \frac{A}{m} \quad (3.133)$$

Однако в ряде случаев удельную активность проб целесообразнее определять по измерению β -излучения толстослойного источника. Измерения основаны на том, что выход β -частиц с поверхности толстослойного источника, т.е. число β -частиц, вылетающих с единичной поверхности толстослойного источника в единицу времени пропорционален не полной, а удельной активности и не изменяется с увеличением его толщины. Под толстослойным подразумевается источник, толщина которого больше пробега β -частиц, в материале источника.

Если скорость счета установки при измерении удельной активности толстослойного препарата равна I , то его удельная активность A_m может быть определена по соотношению:

$$A_m = \frac{I}{n_0 S \eta k} \quad (3.134)$$

где n_0 - выход β -частиц с поверхности источника, имеющего единичную удельную активность;

S - поверхность источника, см;

k - поправка на поглощение и рассеяние β -излучения на пути от поверхности источника до чувствительного объема счетчика ;

η - доля β -частиц, летящих в направлении окна торцевого счетчика, от общего числа вылетающих в телесный угол 4π - поправка на геометрию измерения.

Рассмотрим способы определения величин, входящих в уравнение (3.134).

Если связать выход β -частиц с поверхности толстослойного источника n с пробегом β -частиц в веществе R , коэффициентом обратного рассеяния q и удельной активностью A_m , то будет иметь место следующее соотношение:

$$n = \frac{A_m \cdot \bar{R}(1-q)}{4} \quad (3.135)$$

где \bar{R} - средний путь β -частиц данного радионуклида в материале источника, определяемый по уравнению:

$$\bar{R} = \frac{\int_0^{E_{\max}} R(E)N(E)dE}{\int_0^{E_{\max}} N(E)dE} \quad (3.136)$$

где $N(E)dE$ -энергетическое распределение β -спектра;

$R(E)$ - пробег электронов с энергией E .

Для приближенных вычислений выхода β -частиц с поверхности толстослойного источника среднюю длину пути можно заменить величиной пробега частиц энергии E :

$$\bar{R} \cong R(\bar{E}) \quad (3.137)$$

Таблица 3.16

Средние пути β -частиц радионуклидов в различных химических элементах, г/см²

| Элемент | ³⁵ S | | ⁹⁰ Sr | | ³² P | |
|---------|-----------------|--------------|------------------|--------------|-----------------|--------------|
| | \bar{R} | $R(\bar{E})$ | \bar{R} | $R(\bar{E})$ | \bar{R} | $R(\bar{E})$ |
| H | 0.00255 | 0.00242 | 0.0249 | 0.0209 | 0.136 | 0.128 |
| C | 0.00620 | 0.00586 | 0.0584 | 0.0493 | 0.320 | 0.302 |
| N | 0.00632 | 0.00601 | 0.0594 | 0.0501 | 0.321 | 0.305 |
| O | 0.00646 | 0.00616 | 0.0605 | 0.0514 | 0.326 | 0.309 |
| Al | 0.00732 | 0.00694 | 0.0670 | 0.0568 | 0.342 | 0.342 |
| Fe | 0.00860 | 0.00831 | 0.0776 | 0.0664 | 0.403 | 0.374 |
| Cu | 0.00893 | 0.00867 | 0.0806 | 0.0684 | 0.424 | 0.396 |
| Cd | 0.0100 | 0.00987 | 0.0878 | 0.0768 | 0.468 | 0.445 |
| Pb | 0.0136 | 0.0136 | 0.115 | 0.0990 | 0.542 | 0.538 |

В большинстве случаев материал источника представляет собой сложное вещество. Обозначим через f_i весовую долю атомов i -го простого вещества в сложном, а через \bar{R}_i - среднюю длину пути β -частиц в i -м простом веществе. Тогда величину \bar{R} в сложном веществе можно найти из уравнения:

$$\frac{1}{\bar{R}} = \sum_{i=1}^n \frac{f_i}{\bar{R}_i} \quad (3.138)$$

Коэффициент обратного рассеяния β -излучения (q) зависит от атомного номера вещества (Z), возрастая с увеличением Z (рис.3.39).

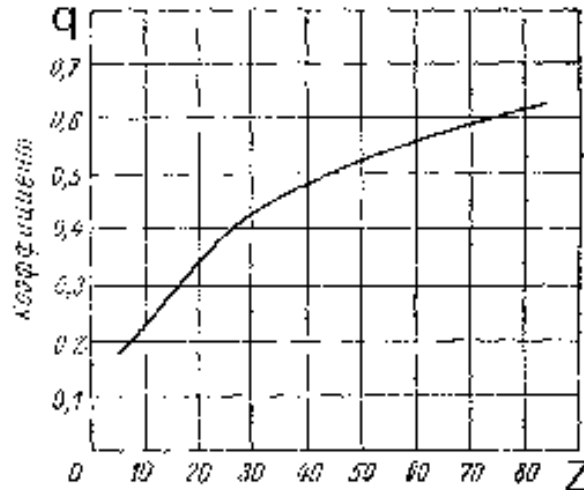


Рис.3.39. Зависимость коэффициента обратного рассеяния β -излучения (q от атомного номера Z вещества)

Если известны коэффициенты обратного рассеяния для простых веществ, входящих в состав сложного, то величину q для сложного вещества можно определить из следующего соотношения:

$$\frac{1+q}{1-q} = \sum_{i=1}^n f_i \frac{\bar{R}}{\bar{R}_i} \cdot \frac{1+q_i}{1-q_i} \quad (3.139)$$

где q и q_i - коэффициенты обратного рассеяния в сложном и простом веществах соответственно, \bar{R} и \bar{R}_i - пробег электронов данной энергии \bar{E} в сложном и простом веществах.

Соотношение (3.139) дает хорошее совпадение с экспериментально полученными величинами.

Таким образом, и величина коэффициента обратного рассеяния β -излучения q , и средний путь β -частиц в веществе источника увеличивается с ростом атомного номера Z материала источника. В целом же выход β -излучения [см. (3.135)] с поверхности толстослойного источника слабо зависит от величины Z .

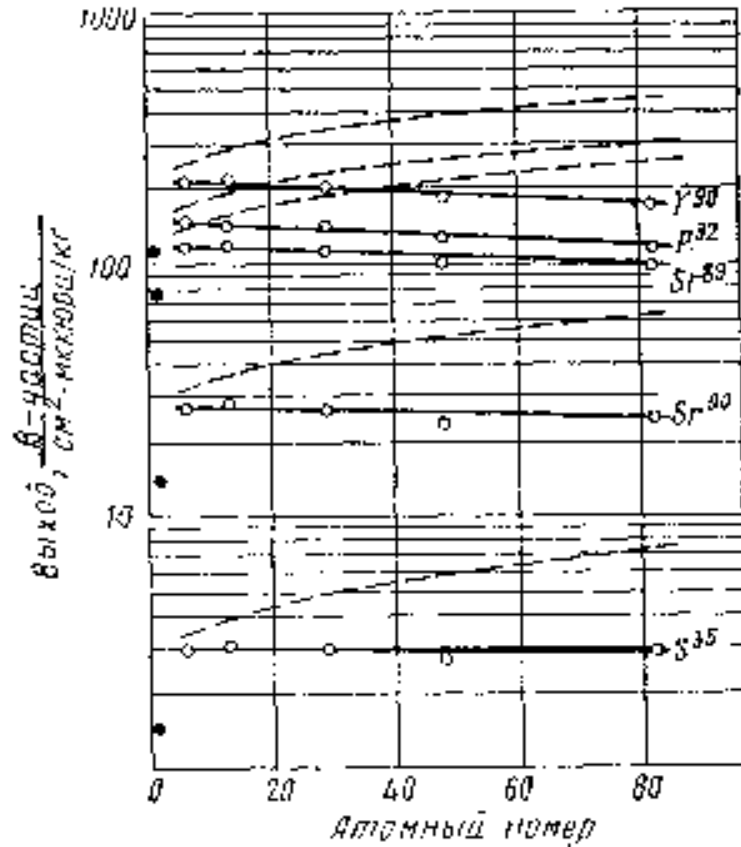


Рис.3.40. Зависимость выхода β -частиц с поверхности толстослойного источника от атомного номера вещества

Если в состав вещества толстослойного источника входят главным образом элементы, имеющие атомный номер $Z < 30$, для которых выход β -частиц мало изменяется с изменением Z , то для таких проб величину n можно определить по формуле:

$$n = \frac{A_m \bar{R}_{Al}(1 - q_{Al})}{4} \quad (3.140)$$

Для алюминия $q=0.26$, поэтому, учитывая соотношение (5) и размерности величин, для выхода β -частиц можно записать следующее уравнение:

$$n = \frac{3.7 \cdot 10^4 \cdot 60 \cdot 0.74 \cdot A_m \cdot R_{Al}(\bar{E})}{10^6 \cdot 4} = 0.41 A_m \cdot R_{Al}(\bar{E}) \quad (\text{част} \cdot \text{мин}^{-1} \cdot \text{см}^{-2}) \quad (3.141)$$

где $R_{Al}(\bar{E})$ - максимальный пробег β -частиц средней энергии \bar{E} в алюминии, мг/см², A_m - удельная активность, мкКи/кг.

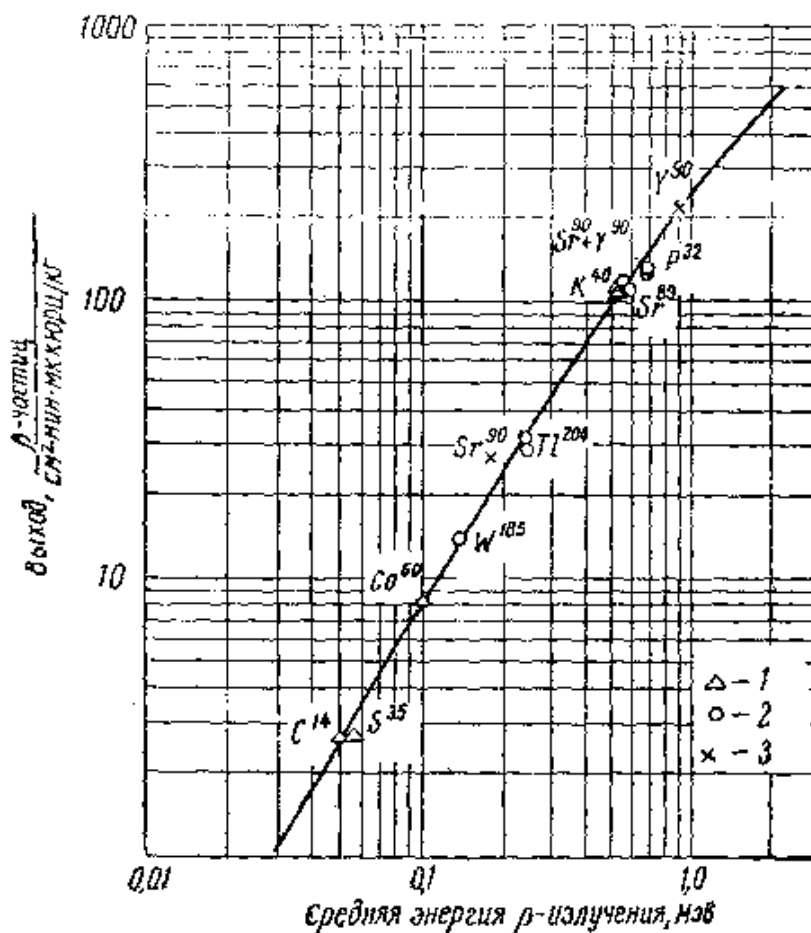


Рис.3.41. Зависимость выхода β -частиц с поверхности толстослойного источника от средней энергии β -излучения

Проверка показала, что отклонение экспериментальных точек от кривой на рис.3.41 не превышает 20% для всех источников, атомный номер материала которых меньше 30. Таким образом, если не требуется большой точности измерения, можно пользоваться величиной выхода, рассчитанной по формуле (3.141) при любом составе источника.

При измерении методом толстой пробы необходимо учитывать, что для толстослойного источника может иметь место не изотропный характер вылета частиц с его поверхности. Данный факт необходимо учитывать внесением поправок в расчет относительного телесного угла η или использовать геометрию измерений, близкую к 2π .

3.6. Измерение удельной альфа-активности толстых образцов

Для целей дозиметрии можно считать, что пробег α -частиц данного изотопа в данном веществе практически одинаков.

Следует отметить, что пробег α -частиц в твердых телах большинства α -активных изотопов составляет несколько десятков микрон. Траектории α -частиц в веществе прямолинейны.

Если взять плоский тонкий источник α -частиц с активностью A расп/мин и закрыть его поглотителем толщиной x мг/см², то через поглотитель пройдут лишь те α -частицы, которые вылетают в направлении конуса с углом при вершине, равным 2θ .

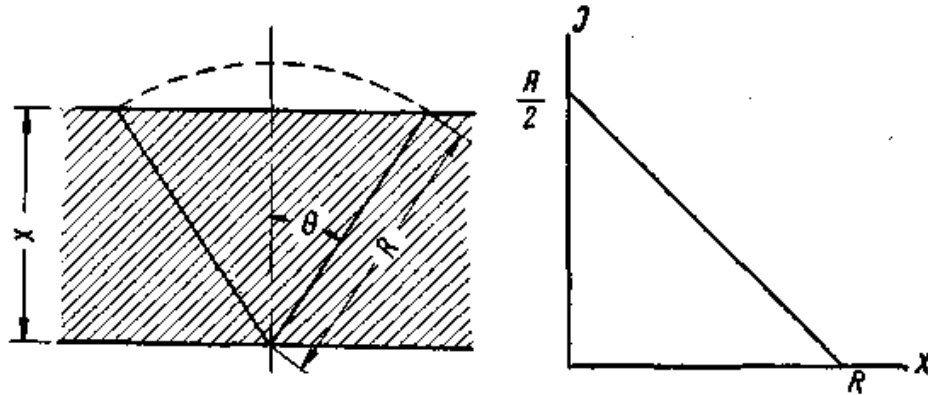


Рис. 3.42. Зависимость прохождения α -частиц через поглотитель от его толщины.

Эту зависимость можно выразить в виде соотношения:

$$I = \frac{A}{2} \left(1 - \frac{x}{R}\right) \quad (3.142)$$

где R – пробег α -частиц в материале поглотителя в мг/см².

Как видно из уравнения (3.142), зависимость количества α -частиц, прошедших через поглотитель, от толщины поглотителя представляет собой прямую линию (см. рис. 3.42).

Учитывая уравнение (3.142), нетрудно рассчитать выход α -частиц из толстого образца ($x > R$) в зависимости от удельной активности образца. Количество α -частиц, вылетающих с поверхности образца из слоя dx , находящегося на глубине x , определяется соотношением, имеющим вид:

$$dI = \frac{A_m}{2} S \left(1 - \frac{x}{R}\right) dx \quad (3.143)$$

где A_m — удельная активность образца; R — пробег α -частиц в образце в мг/см²; S — поверхность образца в см².

Из уравнения (3.143) общее количество α -частиц, вылетающих с поверхности образца, определяется по соотношению:

$$I_{2\pi} = \frac{A_m S}{2} \int_0^R \left(1 - \frac{x}{R}\right) dx \quad (3.144)$$

После интегрирования уравнения (3.144) получаем связь между количеством α -частиц, выходящих с поверхности толстого образца и его удельной активностью:

$$I_{2\pi} = \frac{A_m S R}{4} \quad (3.145)$$

Следует отметить, что количество α -частиц, вылетающих с поверхности толстого образца, составляет одну четверть от количества распадов в слое, толщина которого равна пробегу α -частиц в образце.

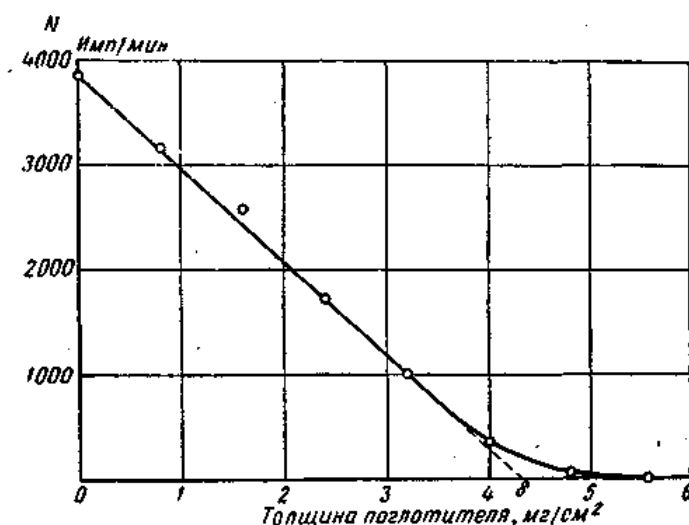


Рис. 3.43. Зависимость счета α -частиц от толщины поглотителя на сцинтилляционной приставке.

Измерения на сцинтилляционной приставке и других приборах показывают, что зависимость счета α -частиц при наложении поглотителя на тонкий источник представляет собой прямую линию, отсекающую на оси абсцисс отрезок, равный δ мг/см² (рис. 3.43). Величина δ всегда меньше пробега α -частиц в поглотителе. Это объясняется тем, что регистрируются не все α -частицы, которые пройдут через поглотитель. Прибор регистрирует лишь те α -частицы, которые входят в чувствительный объем счетчика или слой сцинтиллятора, имея достаточную для регистрации энергию. Эта энергия определяется чувствительностью установки.

Зависимость скорости счета установки от толщины поглотителя при наложении его на тонкий плоский источник α -частиц может быть выражена формулой:

$$\frac{I_x}{I_0} = \left(1 - \frac{x}{\delta}\right) \quad (3.146)$$

где $\frac{I_x}{I_0}$ отношение скорости счета при поглотителе толщиной x мг/см² к скорости

счета без поглотителя. В качестве поглотителя обычно применяют алюминиевые фольги толщиной 1—2 мг/см². Так как пробег α -частиц в поглотителе зависит от его среднего атомного веса, то величина δ имеет ту же зависимость от среднего атомного веса A . Это необходимо учитывать при определении величины δ для вещества образца. Формула для расчета имеет вид:

$$\delta_{обр} = \delta_{погл} \sqrt{\frac{A_{обр}}{A_{погл}}} \quad (3.147)$$

На практике величину δ определяют по нескольким измерениям эталонного источника с поглотителем и без него. Решив уравнение (3.146) относительно δ , получим следующую зависимость:

$$\delta = x \frac{I_0}{I_0 - I_x} \quad (3.148)$$

где x — толщина фольги в $\text{мг}/\text{см}^2$.

Зная закон поглощения α -частиц в слое образца, нетрудно найти зависимость скорости счета установки от удельной активности толстого образца. Формула для расчета имеет вид:

$$I = \frac{A_m \eta S \delta_{\text{обр}}}{2} \quad (3.149)$$

где I — скорость счета установки; η — эффективность счета установки (**в направлении 4π**) при измерении эталонного тонкого источника; A_m — удельная активность образца; $\delta_{\text{обр}}$ — толщина слоя образца, из которого α -частицы регистрируются; S — площадь образца в см^2 .

Из уравнения (3.149) удельная активность образца определяется по соотношению:

$$A_m = \frac{2I}{\eta S \delta_{\text{обр}}} \quad (3.150)$$

На практике измерение α -активности толстых образцов производится следующим образом. Отобранная для исследования проба тщательно перемешивается. После этого изготавливается один или несколько толстых образцов для измерения на радиометрической установке. Обычно для измерения толстых α -образцов используются тарелочки с высотой бортика 2—3 мм. Диаметр тарелочки определяется размерами входного окна счетного устройства и не должен превышать его.

Перед измерением толстых α -образцов необходимо определить эффективность счета установки по эталонному источнику. Следует иметь в виду, что диаметр эталонного источника должен быть таким же, как и исследуемый образец. Энергия α -частиц эталонного источника должна быть такой же, как энергия α -частиц в измеряемом образце или отличаться незначительно. Необходимо также следить за тем, чтобы поверхность толстого образца при измерении была на том же расстоянии от входного окна счетного устройства, как и поверхность эталонного источника. По нескольким измерениям эталонного источника с фольгами и без них определяется величина $\delta_{\text{обр}}$. Расчет удельной активности образца ведется по формуле (3.150). Минимальная удельная активность толстого образца, которую можно измерить таким методом с помощью сцинтилляционной установки, составляет ~ 3700 Бк/кг.

Глава 4. ОТНОСИТЕЛЬНЫЕ МЕТОДЫ ИЗМЕРЕНИЯ АКТИВНОСТИ НУКЛИДОВ

4.1. Общие принципы относительных измерений активности

Любой из рассмотренных выше методов абсолютного измерения активности нуклидов в принципе может стать относительным, если эффективность детектора в соответствующей установке будет определена с помощью радиоактивного источника или образца с известной активностью нуклида. Поскольку, однако, установки для абсолютных измерений обычно довольно сложны и дороги, на практике для относительных измерений используют более простые и дешевые измерительные устройства. Вообще говоря, любое устройство, детектирующее ионизирующие излучения, может быть использовано для относительных измерений активности нуклидов, так же как и любой подходящий градуированный измерительный прибор (радиометр или дозиметр). Если учтены все систематические погрешности и введены соответствующие поправки, то любой измерительный прибор и измерительная установка имеют линейную характеристику, т. е. зависимость измеряемого эффекта, создаваемого излучением радиоактивного источника, от активности нуклида в этом источнике

$$I = kA \quad (4.1)$$

Коэффициент пропорциональности k , или градуировочный коэффициент, характеризует эффективность измерительной установки или прибора, т. е. эффект, создаваемый излучением источника данного нуклида, отнесенный к единице активности нуклида,

$$k = I_0/A_0 \quad (4.2)$$

Значение k определяют, заменяя измеряемый источник подобным ему источником с известной активностью нуклида, т. е. образцовым источником. Так как k , вообще говоря, зависит от вида и энергии излучения, то градуировку необходимо проводить для каждого данного нуклида и для каждого отдельного типа источника, определяемого геометрической формой и размерами, радиохимическим составом, структурой и т. п.

В некоторых случаях градуировочный коэффициент зависит также от давления, температуры и влажности воздуха. Поэтому, если нет уверенности в стабильности градуировки измерительной установки или прибора во времени, ее осуществляют при каждом измерении, т. е. сравнивают измеряемый источник с однотипным образцовым, поочередно помещая их в измерительную установку. Можно также однажды провести градуировку прибора или установки по источникам различных типов и затем проверять стабильность градуировки по какому-либо одному контрольному источнику со стабильными характеристиками, изготовленному из долгоживущего нуклида, например радия. Постоянство градуировки установки или прибора для этого источника гарантирует постоянство градуировки и для любого другого источника.

Из уравнений (4.1) и (4.2) следует, что активность нуклида в источнике

$$A = A_0 \frac{I}{I_0} \quad (4.3)$$

т. е. равна активности нуклида в образцовом источнике, умноженной на отношение эффектов, создаваемых в детекторе излучением измеряемого и образцового источников. ***Полученное уравнение является основным уравнением любого относительного измерения активности нуклидов.***

Из измерительных систем, используемых для относительных измерений активности нуклидов, наиболее широко распространены **счетные системы и системы с ионизационными камерами**. Первые в особенности применяют для измерения низких уровней активности; недостатком этих систем является сравнительно невысокая стабильность, однако некоторые типы счетчиков могут сохранять свои характеристики в течение длительного времени. Хорошая воспроизводимость результатов измерений и простота в обращении, присущие ионизационным камерам, делают их использование для относительных измерений активности нуклидов предпочтительным во всех случаях, когда это представляется возможным.

Для сравнения α -излучающих источников с очень тонким активным слоем — меньше 100 мкг/см^2 — может быть применена ионизационная камера с телесным углом 2π . Камера дает возможность измерять активность нуклидов от ~ 1 до $\sim 10^4$ расп./с. При более высоких значениях активности из-за трудности создания режима насыщения в камере прибегают к уменьшению телесного угла или применяют сетчатые фильтры.

При наличии сильного фона β - или γ -излучения используют импульсные ионизационные α -камеры, так как импульс от α -частицы, создающей значительно более сильную ионизацию, чем электроны, легко может быть выделен радиотехническими средствами.

Особый случай представляет измерение активности α -излучающих нуклидов в слоях, толщина которых превышает длину пробега частиц в данном веществе. Ионизация, создаваемая в камере излучением такого «насыщенного» слоя, пропорциональна не общей, а удельной активности нуклида в источнике и площади активной поверхности, с которой излучение попадает на детектор. *Источник, используемый в качестве образцового при такого рода сравнении, должен быть идентичен измеряемому по геометрии, радиохимическому составу и структуре.*

Сравнение α -источников можно проводить также с помощью различного рода счетчиков — газоразрядных, сцинтилляционных или полупроводниковых.

Для сравнения источников из β -излучающих нуклидов с максимальной энергией частиц более $0,3 \text{ МэВ}$ можно применять ионизационные камеры с телесным углом 2π , а также $2\pi\beta$ -счетчики и счетчики с ограниченным телесным углом (газоразрядные или сцинтилляционные).

Для сравнения растворов β -активных нуклидов разработана конструкция жидкостного β -счетчика, представляющего собой цилиндрический стеклянный β -

счетчик, смонтированный коаксиально в стеклянный цилиндр, образующий кольцевой объем вокруг счетчика. Этот объем поочередно наполняют сравниваемыми растворами. Толщина слоя раствора превышает длину пробега в нем β -частиц, и поэтому скорость счета счетчика пропорциональна удельной активности нуклида в растворе. Для сравнения растворов β -нуклидов с малой энергией частиц используют счетчик с тонким окном или без окна; счетчик располагают над свободной поверхностью жидкости, представляющей собой смесь измеряемого раствора с формамидом, так что давление паров воды, мешающих нормальной работе счетчика, снижается до пренебрежимо малого уровня. Растворы β -нуклидов с малой энергией частиц можно сравнивать также с помощью счетчиков с жидким сцинтиллятором.

Для сравнения γ -источников наиболее простым и удобным прибором является ионизационная камера. Одним из первых типов ионизационной камеры был так называемый большой конденсатор М. Кюри, примененный для сравнения радиевых эталонов и представляющий собой плоскую цилиндрическую камеру диаметром 50 см и высотой 6 см с измерительным электродом в виде диска. Измеряемые источники размещали вне камеры на ее верхней плоскости, покрытой слоем свинца толщиной 5 мм для поглощения «мягкой» составляющей γ -спектра радия, благодаря чему снижался эффект самопоглощения. Недостатком камеры такого типа является сильная зависимость телесного угла, внутри которого излучение попадает на камеру, от расстояния между активной частью измеряемого источника и верхней плоскостью камеры; это расстояние зависит от количества и толщины стенок ампул, в которые заключены радиевые источники. Для исключения влияния размеров и положения источника относительно камеры, а также для увеличения чувствительности камеры были сконструированы ионизационные камеры с телесным углом 4π .

Для сравнения γ -источников с малой активностью нуклидов можно применять сцинтилляционные счетчики с телесным углом 4π , содержащие кристалл больших размеров с «колодцем» (каналом) для измеряемого источника.

Наряду с рассмотренными методами относительных измерений активности нуклидов, которые можно называть **методами замещения**, *к относительным следует отнести и дифференциальный метод сравнения источников*. Он заключается в абсолютном измерении разности активности нуклида в двух источниках, один из которых является образцовым, т. е. активность нуклида в этом источнике известна. Если A_0 — активность нуклида в образцовом источнике и ΔA — измеряемая разность значений активности нуклидов в двух источниках, то активность нуклида в измеряемом источнике

$$A = A_0 + \Delta A \quad (4.4)$$

Точность измерения активности дифференциальным методом тем выше, чем меньше ΔA .

Дифференциальный метод относительных измерений используют сравнительно редко, в основном при сравнении радиевых эталонов.

Для сравнения радиевых эталонов предложена дифференциальная ионизационная камера, состоящая из двух одинаковых камер, включенных навстречу. При одинаковом облучении камер разностный ток равен нулю. В одну камеру помещают ампулу с радоном, в другую поочередно помещают радиевые эталоны в порядке убывания массы радия в них. Определяя моменты времени, когда разностный ток становится равным нулю, и пользуясь хорошо известным значением периода полураспада радона (3,825 дня), вычисляют соотношение масс радия в сравниваемых образцах с высокой точностью — погрешность не превышает 0,05%.

Относительные измерения активности бета-излучателей

Относительные измерения заключаются в сравнении скорости счета исследуемого препарата со скоростью счета образцового препарата, содержащего известное количество того же радионуклида, или в сравнении регистрируемой активности двух препаратов, содержащих одинаковые радионуклиды.

Для правильного проведения относительных измерений активности исследуемых препаратов необходимо выполнить несколько условий. Подложки, на которые нанесены измеряемые препараты, должны быть выполнены из одинакового материала и иметь равную толщину либо толщина подложек должна превышать толщину слоя насыщения.

Форма и площадь препаратов должны быть одинаковы. Толщина препаратов должна быть также одинакова либо превышать толщину слоя насыщения (если для работы приходится применять препараты, толщина которых меньше слоя насыщения, то стремятся использовать бесконечно тонкие препараты, так как *изготовление препаратов одинаковой толщины — кропотливая и сложная процедура*). Радиоактивное вещество должно быть равномерно распределено по всему объему препаратов. Перед измерением препараты необходимо тщательно высушивать. Все измерения следует проводить на одной установке с одним и тем же счетчиком и держателем для препаратов. Расположение препаратов относительно счетчика также должно быть одинаковым.

Следует иметь в виду, что погрешности, обусловленные некоторым различием во взаимном расположении препаратов и счетчика, резко возрастают по мере приближения препарата к счетчику; одновременно сильно сказывается и неравномерность распределения активности в препаратах. Поэтому *при относительных измерениях рекомендуется помещать образцы по возможности дальше от счетчика*. Например, для точечного препарата и счетчика с диаметром входного окна 20 мм расстояние между препаратом и окном счетчика должно составлять не менее 2-3 см. Для цилиндрических счетчиков влияние указанного геометрического фактора уменьшается, если измеряемые образцы огибают счетчик.

Чтобы оценить, вносят ли вклад в рассеяние результатов измерений погрешности, связанные с неравномерностью распределения радиоактивного вещества в препарате, рекомендуется провести несколько измерений радиоактивности

препарата с помощью цилиндрического счетчика или торцового счетчика со щелевой диафрагмой, всякий раз поворачивая препарат вокруг оси на некоторый случайный угол.

Если в процессе работы приходится заменять счетчик, защитный домик или другие приспособления, следует определить в новых условиях скорость счета одного из ранее измеренных препаратов и привести результаты всех измерений к одинаковым условиям.

При **относительных измерениях**, выполняемых с помощью счетчиков ядерных частиц, в значения скоростей счета вводятся лишь поправки на разрешающее время счетной установки и фон. Скорость счета препарата, исправленная на разрешающее время и фон, будет равна:

$$I = \frac{I_{изм}}{1 - I_{изм} \tau} - I_{\phi} \quad (4.5)$$

Величина I представляет собой регистрируемую активность; ее называют также истинной скоростью счета.

При проведении длительных работ следует в ходе каждого цикла измерений проверять стабильность аппаратуры и в случае необходимости вводить в результаты соответствующие поправки. Здесь возможны следующие случаи.

1. Экспериментатора интересуют непосредственно значения регистрируемой активности, получаемые на протяжении значительного промежутка времени (например, если при определении периодов полураспада измерения проводятся в течение нескольких дней или даже месяцев). При этом поступают таким образом. Каждый раз, когда измеряют активность исследуемого образца, проводят измерение и стандартного препарата с постоянной скоростью счета (т.е. содержащего радионуклид с настолько большим периодом полураспада, что можно пренебречь изменением его активности за все время предполагаемой работы). Отношение скорости счета I_{cmi} стандартного препарата в момент времени t , к которому собираются привести результаты всех измерений, к скорости счета его I_{cmi} в i -й момент времени дает поправочный коэффициент, на который следует умножить скорость счета I исследуемого образца, полученную в i -й момент времени. Исправленное значение скорости счета будет равно:

$$I_{i \text{ испр}} = I_i \cdot I_{cmi} / I_{cmi} \quad (4.6)$$

2. Экспериментатора интересуют соотношения регистрируемых активностей. В этом случае каждый раз измеряют скорость счета двух стандартных препаратов постоянной активности. Если отношение скоростей счета этих препаратов не остается неизменным, в результаты измерений вносят соответствующие поправки.

3. Иногда в качестве результата экспериментов можно использовать отношения скорости счета исследуемого образца к скорости счета стандартного препарата. При этом отпадает необходимость в введении поправок на нестабильность радиометрической аппаратуры. Заметим, что если стандартный препарат содержит тот же радионуклид, что и исследуемый образец, то нет необходимости вводить и поправку на радиоактивный распад.

Достоинством относительных измерений является их простота. Если стандартный и исследуемый препараты содержат один и тот же радионуклид, причем абсолютная активность стандартного препарата известна, то от результата относительных измерений легко перейти к абсолютной радиоактивности исследуемого образца.

Следует подчеркнуть, что использование любых прямопоказывающих дозиметрических и радиометрических приборов, откалиброванных по образцовым источникам или установкам, напрямую относится к относительным измерениям.

Различные способы относительных измерений активности проб можно разбить на несколько групп исходя из других принципов:

а) способы, использующие относительные измерения активности проб, основанные на прямых сравнениях с образцовыми источниками; в дальнейшем эти способы мы объединим под названием *метод прямых сравнений*;

б) способы, использующие относительные измерения активности проб с применением калиброванной аппаратуры, их можно объединить под названием *метод калиброванной аппаратуры*;

в) способы, в которых для проведения относительных измерений к исследуемым пробам добавляют мерные количества стандартных образцов; эти способы объединим под названием *метод внутреннего стандарта*.

Метод прямых сравнений. Этот метод широко используют при измерениях разнообразных проб. При этом изготавливают источники из исследуемых проб и стандартных образцов по одинаковой методике, одинаковых размеров и формы, или используют последние в готовом виде и подгоняют под них счетные пробы. Источники затем измеряют в одинаковых условиях на подходящей измерительной установке. Активность исследуемых проб A находят из простого соотношения:

$$A = A_0 \frac{I_n - I_\phi}{I_0 - I_\phi} \quad (4.7)$$

где A_0 — активность соответствующего образцового источника; I_n , I_0 , I_ϕ — показания измерительного прибора при измерениях исследуемой пробы, образцового источника и фона.

Естественно, что I_n , I_0 , I_ϕ должны быть соответствующим образом нормированы, т. е. приведены к одному и тому же времени экспозиции, или к одной и той же шкале чувствительности.

При идеальных относительных измерениях все параметры стандартного и исследуемого источников должны быть возможно более близкими. На практике это не всегда достижимо, да и не всегда нужно. Так, требование примерной одинаковости показаний прибора при измерениях образцовых и исследуемых источников может быть нарушено при условии, что вносимые этим погрешности, например погрешности за счет поправок на мертвое время, малы. Более того, использование образцовых источников большей активности в случае изме-

рений низкоактивных проб позволяет сократить общее время измерений. Аналогично, если самопоглощение в источнике регистрируемого измерительной установкой излучения мало, не следует требовать одинаковости материала и толщины пробы и образцового источника. Конечно, при идеальных относительных измерениях, осуществляемых методом прямых сравнений, систематические погрешности, исключая погрешность образцовых источников, практически отсутствуют. Каждый раз при отступлении от требования одинаковости условий измерений образцовых источников и проб возникают систематические погрешности; они должны быть оценены и либо сведены к пренебрежимо малым величинам, либо при расчетах на них следует делать соответствующие поправки.

Метод калиброванной аппаратуры. При рутинных измерениях проб постоянного состава на аппаратуре с хорошей стабильностью часто удобно пользоваться счетными коэффициентами

$$K_c = \frac{A_0}{I_0 - I_\phi} \quad (4.8)$$

Формула (4.7) при этом принимает вид

$$A = K_c (I_n - I_\phi) \quad (4.9)$$

Снова подчеркнем, что I_n , I_0 , I_ϕ должны быть соответствующим образом нормированы. Коэффициенты K_c находят с помощью образцовых растворов или источников периодически, но не реже, чем раз в полгода, и записывают на специальной карте с указанием даты. Указанная карта позволяет выявлять медленный дрейф параметров измерительной аппаратуры, который может быть источником систематических погрешностей измерений активности данным методом. В некоторых случаях счетные коэффициенты находят далеко не так просто, как было показано выше. Например, при работе со спектрометрами энергии в случае селективного счета отдельных пиков конкретных нуклидов не всегда можно получить для каждого из них образцовые растворы или источники. В этих случаях с помощью ОСГИ или других имеющихся образцовых источников строят зависимость от энергии γ -излучения величины

$$\varepsilon_i = \frac{I_{\gamma 0i} - I_\phi}{A_0 p_i} \quad (4.10)$$

где A_0 — активность образцового источника; p_i — квантовый выход γ -излучения для используемой γ -линии; $I_{\gamma 0i}$ и I_ϕ — скорости счета γ -квантов в соответствующем участке спектра при измерениях образцового источника и фона.

Такие зависимости обычно называют кривыми счетной эффективности, или еще короче — кривыми эффективности. Для многих детектирующих систем при тщательно воспроизводимых геометрии и физических условиях измерений форма кривой эффективности остается практически постоянной. Тогда измерения активности проб с j -м нуклидом с помощью такой измерительной установки и образцового источника с другим нуклидом осуществляется с использованием формулы:

$$A_j = \frac{A_0 p_{0i} \varepsilon_{0i} (I_{nk} - I_{\phi k})}{P_{jk} \varepsilon_{jk} (I_{0i} - I_{\phi i})} \quad (4.11)$$

где A_j — активность j -го нуклида в измеряемой пробе; A_0 — активность образцового источника; p_{0i} и ε_{0i} — квантовый выход и эффективность регистрации для i -й линии образцового источника; P_{jk} и ε_{jk} — квантовый выход и эффективность регистрации для k -й линии измеряемого нуклида; I_{nk} и $I_{\phi k}$ — скорость счета пробы и фона в области энергий, соответствующей k -й линии; I_{0i} и $I_{\phi i}$ — скорость счета образцового источника и фона в области энергий, соответствующей i -й линии.

Таким образом, получается сложное сочетание методов. Относительные измерения осуществляются методом прямых сравнений с использованием калиброванной аппаратуры, а именно аппаратуры, для которой заранее установлена форма кривой эффективности.

В тех случаях, когда проверено, что во времени достаточно хорошо сохраняются не только форма кривой эффективности, но и абсолютные значения ее ординат, вместо (4.11) можно использовать более простое выражение:

$$A_j = \frac{I_{nk} - I_{\phi k}}{P_{jk} \varepsilon_{jk}} \quad (4.12)$$

При этом мы получаем метод калиброванной аппаратуры в чистом виде. Возможные изменения формы кривой эффективности в первом случае, или абсолютного значения счетной эффективности — во втором, являются источниками систематических погрешностей. Эти погрешности должны быть оценены и учтены при расчете погрешности результата измерений.

Еще один пример достаточно сложных расчетов счетных коэффициентов — их нахождение способом жидкостного сцинтилляционного счета с использованием внешних стандартов. В этом случае пробу вводят в жидкий сцинтиллятор и регистрируют скорость счета I_n . Скорость счета фона I_ϕ представляет собой скорость счета от измерительной кюветы с жидким сцинтиллятором без пробы. Далее подносят к кювете с препаратом и устанавливают в строго воспроизводимых условиях контрольный источник и находят скорость счета I_k . Поскольку контрольный источник расположен вне системы проба+жидкий сцинтиллятор, его называют внешним стандартом. Установку заранее градуируют, находя зависимость счетных коэффициентов для j -го нуклида от скорости счета внешнего стандарта

$$K_{ски} = F_j (I_k - I_\phi) \quad (4.13)$$

Эта зависимость отражает корреляцию эффективности регистрации излучения j -го нуклида с эффективностью регистрации внешнего стандарта. Соотношение (4.13) позволяет рассчитывать поправки на различие эффекта тушения люминесценции в каждой конкретной счетной кювете. Расчетная формула для определения активности имеет вид

$$A_j = \frac{I_n - I_\phi}{F_j(I_k - I_n)} \quad (4.14)$$

Часто используют не один внешний стандарт, а два и более, и расчеты активности нуклидов в измеряемых пробах проводят по специальным программам на сочлененных с измерительными установками ЭВМ.

Очевидно, в данном случае количество источников систематических погрешностей еще более возрастает, на что необходимо обратить особое внимание. И в таких сложных случаях ситуация существенно упрощается при использовании метода внутреннего стандарта.

Метод внутреннего стандарта. Методом внутреннего стандарта называют группу различных; способов определения активности нуклидов в образцах, при которых в процессе подготовки проб или измерений к ним добавляют мерные порции веществ с заранее известной удельной активностью. В общем случае определение удельной активности проб методом внутреннего стандарта следует осуществлять указанным выше способом. Берут определенное количество одинаковых порций изучаемого материала (препарата). В половину из них добавляют мерные, но разные количества активности определяемого нуклида, A_{0m} . После этого из всех порций проводят подготовку счетных проб по любой методике, в том числе с химическим выделением, обогащением и т. п. Затем с помощью радиометра находят среднюю скорость счета проб, приготовленных из порций без добавок \bar{I}_n и фона \bar{I}_ϕ , а также скорость счета проб с добавками n_m . Используя найденные значения \bar{I}_n , \bar{I}_ϕ и n_m , вычисляют ряд значений величины L_m для каждой из порций с добавкой по формуле:

$$L_m = A_{0m} \frac{\bar{I}_n - \bar{I}_\phi}{I_m - \bar{I}_n} \quad (4.15)$$

Затем строят зависимость L_m от A_{0m} . Полученную кривую экстраполируют до пересечения с осью ординат. Отсекаемая на этой оси ордината и есть активность определяемого нуклида в каждой порции. Когда заранее известно или выяснено в результате проведенных исследований, что получаемая в данном конкретном случае зависимость линейная, кривую снимать не надо: достаточно всего двух измерений — пробы и пробы с добавкой. Активность, нуклида при этом можно определять по формуле:

$$A = A_0 \frac{I_n - I_\phi}{I_0 - I_n} \quad (4.16)$$

где A_0 — активность нуклида в добавке; I_0 , I_n , I_ϕ — скорость счета образца с добавкой, образца без добавки и фона соответственно. Данный метод очень полезен при сложной подготовке проб, а также в случаях, когда эффективность счета зависит от состава и количества образца, как, например, в случае жидкостного сцинтилляционного счетчика.

Во всех рассмотренных выше методах подразумевалось, что образцовый и измеряемый источники имеют или одинаковые размеры и форму и одинаковое самопоглощение регистрируемого излучения, или создать такие условия измерения, при которых это не имеет существенного значения.

Один из чрезвычайно полезных способов изготовления источников для счета, позволяющих освободиться от требования одинаковости самопоглощения излучения в них, — это метод относительных измерений с использованием толстослойных источников. Толстослойным источником называют такой источник, толщина которого больше максимальной длины пробега измеряемых частиц в данном веществе, а радионуклид достаточно равномерно распределен в нем. При этом плотность потока частиц через рабочую поверхность толстослойного источника пропорциональна удельной активности материала, из которого он изготовлен, и не зависит от его толщины. Таким образом, при относительных измерениях удельной активности образцов с использованием толстослойных источников образцовый и измеряемый источники можно делать разной толщины, но поверхность источников, используемая для счета, должна быть одинаковой. Особенно удобно проводить измерения с такими источниками α -и β -излучения в тех случаях, когда низкая удельная активность исследуемого материала не дает возможности получить достаточно тонкие слои в счетных пробах.

При относительных измерениях удельной активности с использованием толстослойных источников можно применять образцовые материалы с известной удельной активностью или изготавливать их с мерными количествами активности, отмеренными из образцовых растворов. Для приготовления толстослойных источников рекомендуется использовать стандартные чашечки, глубину которых выбирают в соответствии с пробегом частиц в материале пробы, а диаметр чашечки должен быть сравним с размерами входного окна детектора ионизирующего излучения.

Относительные измерения активности проб с использованием толстослойных источников проводятся так же, как и описанные выше относительные измерения их активности. Для расчета удельной активности проб можно использовать аналогичные формулы, заменив активность проб и образцовых источников на их удельные активности.

Рассмотрим еще ряд относительных методов измерения активности нуклидов.

4.2. Радиометрический метод определения β -излучающих радионуклидов в смеси

Существующие методы анализа β -излучения по поглощению позволяют анализировать смеси, содержащие до трех нуклидов при условии, что β -спектры являются достаточно простыми, т.е. состоят из одной или двух компонент энер-

гии. При этом наиболее близкие разлагаемые энергии должны отличаться не менее, чем в 1,5 раза.

Однако многие радионуклиды имеют сложные β -спектры, состоящие из 3-4 компонент (^{106}Rh , ^{134}Cs и др.). Для анализа таких смесей применять обычный метод анализа смесей β -излучающих нуклидов по наклону кривой ослабления нельзя. Методы радиохимического анализа более трудоемки, требуют больших затрат и специальной аппаратуры.

Предлагаемый метод анализа смесей β -излучающих нуклидов основан на сравнении хода кривых поглощения β -излучения исследуемой смеси и радионуклидов, присутствие которых предполагается в данной смеси. Таким образом, перед началом эксперимента необходимо исходя из каких-либо дополнительных данных сделать предположение о качественном составе исследуемой смеси β -излучающих нуклидов.

Предлагаемый метод позволяет анализировать смеси из 4–5 радионуклидов независимо от сложности их β -спектров.

Для анализа смеси изотопов предварительно измеряется кривая поглощения суммарного β -излучения, позволяющая проверить сделанные предположения о составе анализируемой смеси. Затем на полученной кривой поглощения выбирается несколько точек количеством не менее числа предполагаемых компонент смеси. Точки для дальнейшего анализа следует выбирать в той части анализируемой кривой, где имеет место плавный ход кривых поглощения каждого из предполагаемых радионуклидов. Наиболее удобно выбирать эти точки в средней и конечной части кривой ослабления, где отсутствует излучение радионуклидов с мягким β -излучением.

Для толщин поглотителей, соответствующих выбранным точкам в той же геометрии измеряется β -активность чистых радионуклидов, присутствие которых предполагается в исследуемой смеси.

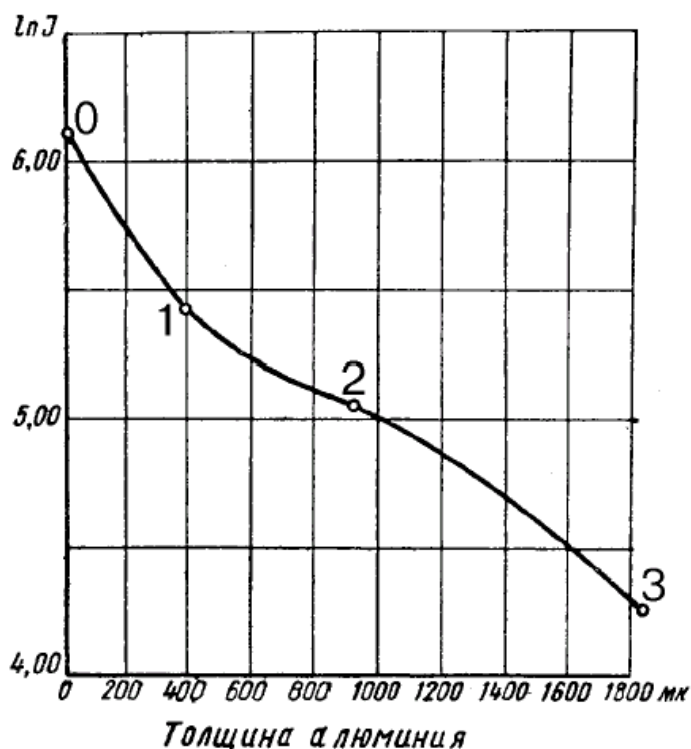


Рис.4.1 Кривая поглощения исследуемой смеси β -излучающих радионуклидов

На кривой поглощения (рис.4.1) в точке 1, соответствующей наименьшей толщине поглотителя, суммарная интенсивность условно принимается за единицу, т.е. (предполагается четырехкомпонентная смесь)

$$x+y+z+t=1 \quad (4.17)$$

где x, y, z, t - доля каждого радионуклида в излучении анализируемой смеси при данной толщине поглотителя.

Тогда для каждой i -й точки с большей толщиной поглотителя можно составить уравнение

$$a_i x + b_i y + c_i z + d_i t = k_i \quad (4.18)$$

где a_i, b_i, c_i, d_i - отношение интенсивности излучения соответствующего чистого радионуклида в i -й точке к интенсивности в 1-й точке;

k_i - отношение интенсивности излучения исследуемой смеси радионуклидов в i -й точке к интенсивности в 1-й точке.

Из решения полученной таким образом системы уравнений находят соотношения радионуклидов в излучении анализируемой смеси для минимальной толщины поглотителя ($x:y:z:t$). Затем, используя кривые поглощения чистых радионуклидов воспроизводится ход кривых в начальной части для каждого из найденных нуклидов. Например

$$I_x^0 = I_{mix}^1 x \frac{I_{x_{обр}}^0}{I_{x_{обр}}^1} \quad (4.19)$$

где x - расчетный вклад первого радионуклида в в излучение анализируемой смеси при минимальной толщине поглотителя; I_x^0 - скорость счета от первого радионуклида при нулевой толщине поглотителя; $I_{x_{обр}}^1$ - скорость счета от образцового источника с первым радионуклидом при минимальной толщине поглотителя; $I_{x_{обр}}^0$ - скорость счета от образцового источника с первым радионуклидом при нулевой толщине поглотителя; I_{mix}^1 - суммарная скорость счета исследуемой смеси при минимальной толщине поглотителя.

Истинное значение активности радионуклидов в смеси может быть определено абсолютным методом определенного телесного угла (если ввести поправки на поглощение β -излучения в окне счетчика и в воздушном промежутке между препаратом и счетчиком, а также учесть поправку на телесный угол измерения η) либо относительным методом путем определения данных поправок по измерениям образцовых источников с известной активностью.

Точность данного метода зависит от числа компонент в исследуемой смеси. На рис.4.2 приведены кривые зависимости относительной среднеквадратичной ошибки определения содержания компоненты от ее концентрации для двух-, трех- и четырехкомпонентных смесей. При этом расчет погрешностей был выполнен для предполагаемых смесей, состоящих из простых β -излучателей с энергиями β -излучения:

- $E_{01}=1,8$ МэВ, $E_{02}=2,6$ МэВ - двухкомпонентные смеси;
- $E_{01}=1,8$ МэВ, $E_{02}=2,6$ МэВ, $E_{03}=3,5$ МэВ - трехкомпонентные смеси;
- $E_{01}=1,8$ МэВ, $E_{02}=2,6$ МэВ, $E_{03}=3,5$ МэВ $E_{04}=4,5$ МэВ - четырехкомпонентные смеси.

Приведенные на рисунке кривые соответствуют статистической точности измерений $\delta=1\%$. Для δ , отличного от единицы, величина относительной ошибки, полученная из графика, должна быть умножена на $\delta\%$.

Из кривых, приведенных на рис.2 видно, что ошибка в определении содержания компонент резко возрастает с числом β -излучателей в смеси. Для того, чтобы проанализировать 3-4 компоненты с достаточно близкими энергиями необходимо производить измерения с большой статистической точностью $\delta \leq 1\%$. Для двухкомпонентной смеси относительная погрешность определения может быть рассчитана более точно по уравнению

$$\frac{\Delta x}{x} = \frac{\delta \sqrt{2}}{\alpha} \sqrt{1 + (1 + \alpha)^2 \frac{y^2}{x^2} + (1 + \alpha) \frac{y}{x}} \quad (4.20)$$

где $1 + \alpha = \frac{b}{a}$; a и b - коэффициенты перед x и y , соответственно, во втором уравнении системы.

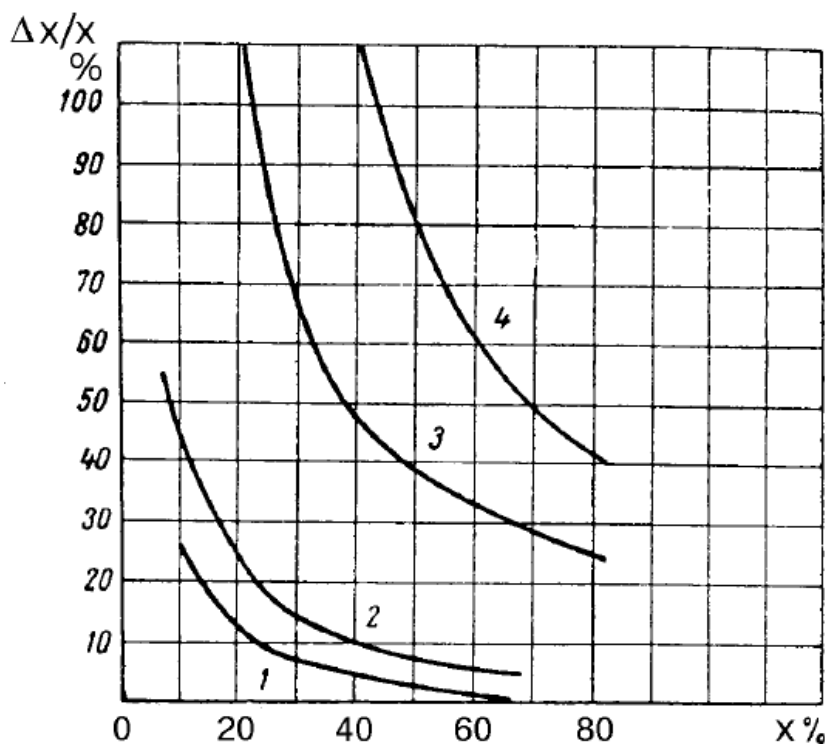


Рис.4.2 Погрешности определения компонентов в смеси радионуклидов в зависимости от их величины (1,2 - две компоненты при $\alpha=1,08$ и $\alpha=0,38$, соответственно, 3 - три компоненты, 4 - четыре компоненты)

4.3. Спектрометрический метод измерения активности нуклидов

Сцинтилляционный метод измерения энергетического спектра ионизирующих излучений основан на анализе световых вспышек (сцинтилляций), возникающих в определенных веществах (сцинтилляторах) при взаимодействии излучения с этими веществами.

К настоящему времени получено много веществ, обладающих сцинтиллирующими свойствами. По химическому составу их можно разделить на органические и неорганические, по физическому состоянию — на твердые (кристаллические и пластмассовые), жидкие и газообразные.

Характерной особенностью сцинтилляторов является их малое время высвечивания. Длительность вспышки в неорганических сцинтилляторах, возникающей при попадании в них заряженной частицы или кванта фотонного излучения, составляет примерно 10^{-7} с. Для органических сцинтилляторов это время еще меньше: $10^{-7} - 10^{-9}$ с. Другая важная особенность — **пропорциональность между интенсивностью вспышки и энергией, потерянной ионизирующей частицей или квантом в сцинтилляторе**. Отметим еще одно важное обстоятельство, заключающееся в возможности изготовления сцинтилляторов больших размеров и заданной формы, что позволяет создавать на их основе сцинтилляционные детекторы широкого функционального назначения.

В спектрометрии α -излучения и других тяжелых заряженных частиц использование сцинтилляторов ограничено монокристаллами CsI(Tl). Обычно применяют тонкие монокристаллы с целью уменьшения фона от β - и γ -излучений.

В β -спектрометрии возможности сцинтилляторов весьма ограничены в первую очередь из-за сильного отражения электронов от поверхности сцинтилляторов. Особенно это характерно для неорганических кристаллов. Поэтому предпочтение отдается органическим кристаллам антрацену и стильбену. В некоторых случаях используются жидкие сцинтилляторы, например для измерения спектра низкоэнергетических β -излучателей (^3H , ^{14}C , ^{35}S).

Наиболее перспективным оказалось применение сцинтилляторов в спектрометрии γ -излучения. Чаще всего используется кристалл NaI(Tl). Из других неорганических сцинтилляторов используют CsI(Tl), особенно в спектрометрии рентгеновского и низкоэнергетического γ -излучения и KI(Tl). При измерении спектров γ -излучения высоких энергий получили применение жидкие сцинтилляторы, поскольку на их основе можно создать детекторы больших размеров. Отметим, что сцинтилляционные спектрометры могут измерять энергию, относительную интенсивность и внешнее излучение. *Поскольку они являются приборами для относительных измерений, требуется их предварительная градуировка.*

Ионизационный метод основан на измерении ионизационного эффекта, возникающего в чувствительном объеме детектора при взаимодействии с ним ионизирующего излучения. В спектрометрии заряженных частиц и фотонного излучения используют в основном три разновидности ионизационных детекторов: импульсная ионизационная камера с сеткой, пропорциональный счетчик и полупроводниковый детектор (ППД). Чувствительный объем ионизационной камеры и пропорционального счетчика наполняется рабочим газом, состоящим из инертного газа (обычно аргона) с добавлением нескольких процентов многоатомного газа (в основном метана). Чувствительной областью ППД является высокоомный слой соответствующего полупроводника. По сути, ППД представляет собой твердотельную ионизационную камеру.

Отметим, что для всех ионизационных детекторов, работающих в спектрометрическом режиме, должно выполняться условие, чтобы пробег заряженных частиц полностью укладывался в чувствительной области. Только в этом случае существует прямая связь между амплитудой выходного сигнала и энергией частицы. Это условие не распространяется на спектрометрические γ -детекторы, поскольку взаимодействие γ -излучения с веществом чувствительного объема этих детекторов осуществляется посредством фотоэффекта, комптоновского эффекта и эффекта образования пар.

Спектрометры с ионизационными детекторами используются в α -, β - и γ -спектрометрии. Так, спектрометры с ионизационными камерами преимущественно используются для измерения энергетического распределения α -излучения. Спектрометр с пропорциональным счетчиком применяется в β -

спектрометрии, а также в спектрометрии рентгеновского и низкоэнергетического γ -излучения. Спектрометры с поверхностно-барьерными кремниевыми детекторами используются преимущественно в спектрометрии α -излучения. Спектрометры с кремниевыми диффузионно-дрейфовыми детекторами измеряют β -спектры, а также спектры рентгеновского и низкоэнергетического γ -излучения. Германиевые детекторы позволили создать γ -спектрометры, обладающие высокими техническими параметрами. Из рассмотренных спектрометров наиболее широкое практическое применение получили спектрометры со сцинтилляционными и полупроводниковыми детекторами. Поэтому дальнейшее изложение относится преимущественно к этим типам спектрометров.

Основные параметры спектрометров. Аппаратурный спектр, форма аппаратурной линии и энергетическое разрешение. Распределение импульсов по амплитудам, получаемое на спектрометрах при регистрации заряженных частиц или фотонов, получило название аппаратурного спектра.

Каждой моноэнергетической группе частиц или квантов фотонного излучения будет соответствовать свой аппаратурный спектр, вид которого определяется типом регистрируемого излучения, типом используемого спектрометра и его характеристиками, условиями измерения и т. д. Аппаратурный спектр, получаемый при регистрации моноэнергетических частиц или фотонного излучения, называется аппаратурной линией данного спектрометра.

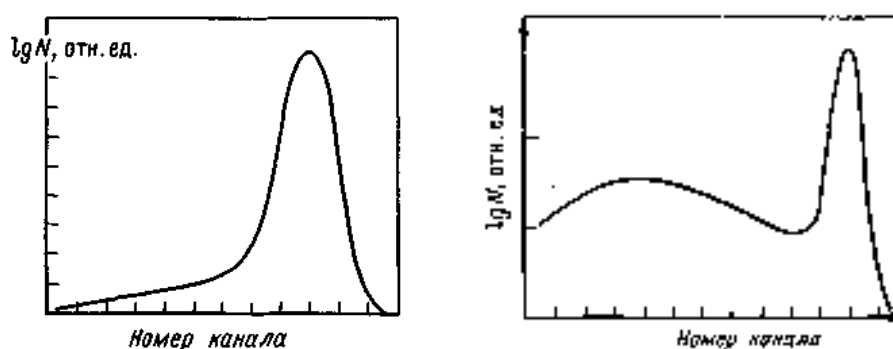


Рис. 4.3. Аппаратурная линия альфа-спектрометра с ионизационным детектором

Рис. 4.4. Аппаратурная линия бета-спектрометра с ионизационным детектором

Для примера на рис. 4.3 и 4.4 показаны аппаратурные спектры α -частиц и моноэнергетических электронов, являющиеся аппаратурными линиями α - и β -спектрометров с ионизационными детекторами. Как видно из этих рисунков, аппаратурная линия в обоих случаях состоит из двух основных компонентов: амплитудного распределения с явно выраженным максимумом и непрерывного распределения со стороны меньших энергий, расположенного слева от максимума. *Первый компонент соответствует полной потере энергии заряженной частицы в чувствительной области детектора. Поэтому он получил название пика полного поглощения (ППП).* Второй компонент является следствием процессов, приводящих к частичной потере энергии заряженными частицами вне

чувствительной области детектора, а также неполным сбором носителей заряда в детекторе. В литературе этот компонент спектра часто называют «хвостом».

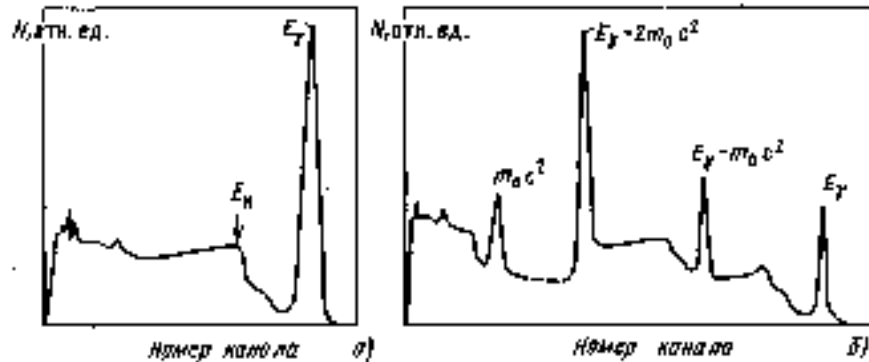


Рис. 4.5. Аппаратурная линия гамма-спектрометра с ионизационным детектором: а – $E_\gamma < 2m_0c^2$; б – $E_\gamma > 2m_0c^2$

Еще более сложный вид аппаратурной линии наблюдается у гамма-спектрометров, причем для разных энергетических диапазонов ее вид будет различен. На рис. 4.5, а, б приведены гипотетические аппаратурные спектры моноэнергетического γ -излучения. В первом примере $E_\gamma < 2m_0c^2$. Здесь правый максимум есть ППП, так как он обусловлен полным поглощением энергии γ -излучения в чувствительной области детектора за счет фотоэффекта и многократного комптоновского рассеяния с последующим фотопоглощением. Распределение импульсов, находящееся слева от ППП, обусловлено регистрацией комптоновских электронов, образующихся при взаимодействии γ -излучения энергией E_γ с веществом чувствительной области детектора. Оно представляет собой протяженный континуум с максимальной энергией E_K , которая связана с энергией регистрируемого γ -излучения E_γ соотношением

$$E_K = \frac{E_\gamma}{[1 + (m_0c^2)]/(2E_\gamma)} \quad (4.21)$$

Напомним, что энергия рассеянного при комптоновском взаимодействии гамма кванта связана с энергией исходного гамма-кванта и углом рассеяния θ_S соотношением

$$E_\gamma^{\text{комп}} = \frac{E_\gamma^0}{1 + \frac{E_\gamma^0}{mc^2}(1 - \cos \theta_S)} \quad (4.22)$$

В некоторых спектрометрах на краю комптоновского распределения имеется плавная ступенька, появление которой обусловлено двукратным комптоновским взаимодействием фотона в чувствительной области детектора. Эта ступенька характерна для спектрометров, укомплектованных детекторами с малым объемом чувствительной области. При увеличении объема чувствительной области детектора ступенька уменьшается.

Рассмотрим теперь аппаратурную линию гамма-спектрометра при регистрации моноэнергетических фотонов, энергия которых удовлетворяет условию $E_\gamma > 2m_0c^2$ (рис. 4.5,б). Здесь наряду с ППП имеются еще три пика, соответствующие фотонам с энергией $E_\gamma - m_0c^2$, $E_\gamma - 2m_0c^2$ и m_0c^2 . Эти пики являются следствием процесса взаимодействия γ -излучения с веществом чувствительной области детектора путем образования электронно-позитронных пар. В этом процессе фотон исчезает, образуя позитрон с кинетической энергией E_K^+ и электрон с кинетической энергией E_K^- . Поскольку на образование пары позитрон — электрон требуется затратить энергию $2m_0c^2$, уравнение баланса энергии для этого эффекта будет иметь следующий вид:

$$E_\gamma = E_K^+ + E_K^- + 2m_0c^2 \quad (4.23)$$

Позитрон и электрон при своем движении в чувствительной области детектора теряют свою кинетическую энергию на ионизацию среды. Позитрон, потерявший кинетическую энергию, затем аннигилирует, испуская два фотона с энергией m_0c^2 (511 кэВ) каждый. В том случае, когда эти фотоны полностью теряют энергию в чувствительной области детектора за счет фотоэффекта и многократного комптоновского взаимодействия, можно говорить о том, что исходный квант за счет перечисленных процессов полностью потерял свою энергию и импульс от него регистрируется в ППП. Таким образом, ППП в этом случае формируется не только за счет фотоэффекта и комптоновского многократного рассеяния, но и эффекта образования пар, причем вклад в ППП за счет образования пар возрастает по мере увеличения энергии регистрируемого γ -излучения.

Наряду с полным поглощением энергии γ -излучения имеется вероятность того, что один аннигиляционный квант с энергией m_0c^2 покинет чувствительную область детектора, не успев провзаимодействовать с ней. В результате первичный фотон потеряет в детекторе энергию на m_0c^2 меньше, т. е. $E_\gamma - m_0c^2$. Пик от регистрации такого процесса получил название пика однократного вылета. В том случае, когда оба аннигиляционных кванта не поглотятся или не потеряют части своей энергии в чувствительной области детектора, потеря энергии первичного фотона в детекторе составит $E_\gamma - 2m_0c^2$ (пик двукратного вылета). Наличие, в аппаратурном спектре γ -излучения пика с энергией m_0c^2 вызвано регистрацией детектором аннигиляционных фотонов, вылетающих из материалов, которые окружают детектор, и возникающих в этих материалах при попадании в них квантов фотонного излучения.

Из рассмотренных примеров видно, что аппаратурная линия имеет довольно сложную форму и существенно отличается от истинного энергетического спектра регистрируемых заряженных частиц или фотонного излучения. При одновременной регистрации нескольких групп заряженных частиц или фотонов аппаратурный спектр будет представлять собой суперпозицию аппаратурных ли-

ний каждой моноэнергетической группы ионизирующего излучения данного сорта. Расшифровка такого спектра связана с определенными трудностями.

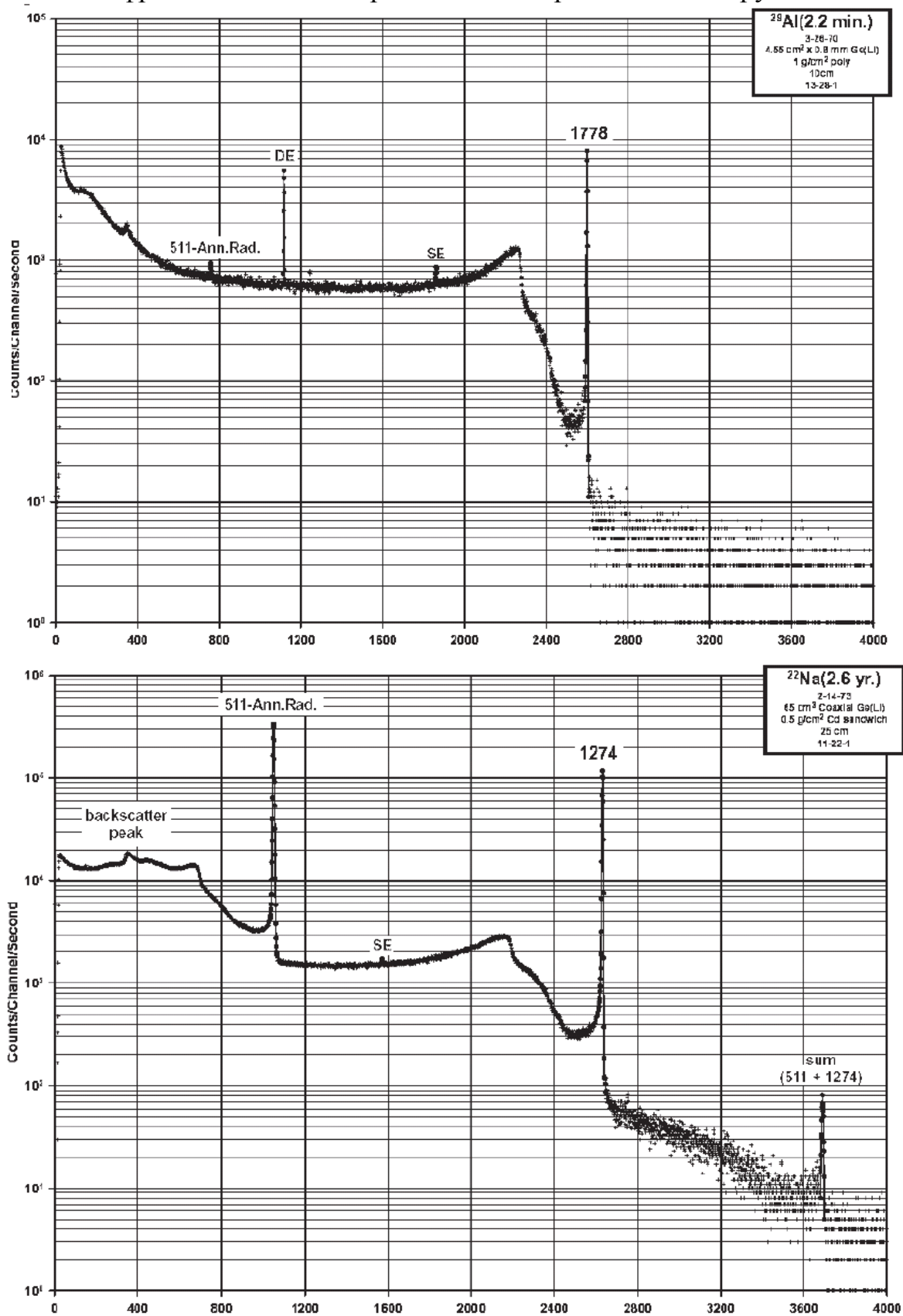


Рис. 4.6. Примеры реальных аппаратных спектров, полученных на полупроводниковом спектрометре гамма-излучения

Наиболее важным параметром, характеризующим технический уровень спектрометра любого типа, является разрешающая способность, т. е. способность обнаружить две группы моноэнергетического излучения одного вида. Разрешающую способность количественно оценивают по энергетическому разрешению, являющемуся величиной, обратно пропорциональной разрешающей способности. Под энергетическим разрешением ΔE понимается полная ширина ППП на половине его высоты. Обычно ΔE выражается в энергетических единицах (эВ, кэВ). Физический смысл этого параметра заключается в том, что он определяет, какая минимальная разница в энергиях ΔE должна быть у двух моноэнергетических групп заряженных частиц или фотонов одинаковой интенсивности, чтобы спектрометр смог их различить.

Часто энергетическое разрешение выражают в относительных единицах. Относительное энергетическое разрешение $\eta_{\text{отн}}$ в процентах определяется как $\eta_{\text{отн}} = (\Delta E/E_i) \cdot 100$, где E_i — энергия регистрируемого излучения. Анализ формы ППП показывает, что у большинства спектрометров она имеет несимметричный характер.

Для таких спектрометров знать энергетическое разрешение недостаточно, чтобы описать форму линии. Поэтому вводят дополнительные параметры, уточняющие эту форму.

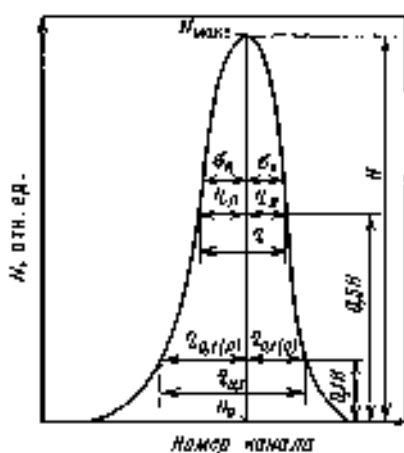


Рис. 4.7. Параметры пика полного поглощения

Эффективность регистрации. Эффективность регистрации, как и энергетическое разрешение, относится к основным параметрам, характеризующим все существующие типы спектрометров. В прикладной спектрометрии преимущественно используется понятие абсолютной эффективности регистрации в ППП $\varepsilon_{\text{абс}}$, под которым понимается отношение числа частиц определенной энергии, зарегистрированных в ППП в единицу времени, к внешнему излучению источника, установленного на заданном и фиксированном расстоянии от детектора. В соответствии с этим определением $\varepsilon_{\text{абс}}$ рассчитывают по формуле

$$\varepsilon_{\text{абс}} = N_{\Sigma} / (t \cdot F_{\text{вн}}) \quad (4.24)$$

где t — длительность набора спектра, при котором в ППП зарегистрировано N_{Σ} импульсов (без учета фоновых импульсов); $F_{вн}$ — внешнее моноэнергетическое излучение данного типа, испускаемое источником. Эффективность регистрации спектрометра определяют в относительных единицах или в процентах.

Вид характеристики преобразования и интегральная нелинейность. Характеристикой преобразования спектрометров является градуировочная характеристика по энергии — зависимость между значениями энергии регистрируемого моноэнергетического излучения и номерами каналов амплитудного анализатора, в которых зафиксированы максимумы соответствующих ППП. Для всех серийных спектрометров характеристику преобразования представляют в виде прямой линии:

$$E = A + Bn, \quad (4.25)$$

где E — энергия моноэнергетического излучения; n — номер канала анализатора, в котором зарегистрирован максимум ППП, соответствующего данному излучению; A и B — постоянные коэффициенты. Для построения характеристики преобразования используют источники моноэнергетического излучения с известной энергией в заданном энергетическом диапазоне.

Коэффициенты A и B определяют по совокупности экспериментальных точек методом наименьших квадратов. Отметим, что коэффициент B имеет размерность килоэлектрон-вольт на канал и определяет энергетическую ширину канала анализатора.

Спектрометрический γ -анализ в основном применяют для одновременного определения нескольких радиоактивных элементов и реже для определения какого-либо одного элемента. Этот анализ основан на измерении γ -излучения проб в нескольких энергетических интервалах, в каждом из которых преобладает излучение одного из определяемых элементов.

Наиболее типичным примером гамма-спектрометрического анализа является анализ минерального сырья, содержащего радионуклиды уранового и ториевого рядов.

Выбор оптимальных энергетических интервалов измерений проводят по дифференциальным спектрам γ -излучения урановой и ториевой руд, снятых соответственно сцинтилляционным или полупроводниковым гамма-спектрометром, на котором будут проводиться измерения.

Измерения на сцинтилляционном гамма-спектрометре. В спектрах, измеренных сцинтилляционным гамма-спектрометром, выделяются следующие линии:

| Энергия, МэВ | Излучатель |
|--------------|-------------------|
| 0,093 | UX, |
| 0,240 | ThB |
| 0,350 | RaB |
| 0,609 | RaC |
| 0,930 | MsTh ₂ |
| 1,76 | RaC |
| 2,62 | ThC |

Для анализа пробы измеряют в таких энергетических интервалах, в которые попадают указанные линии определяемых элементов. Для измерений при максимальной чувствительности спектрометра важно для каждого интервала измерений выбрать оптимальные уровни дискриминации при определенной ширине канала измерений.

В каждом интервале кроме линии от данного элемента измеряется непрерывный спектр рассеянного излучения, связанного с γ -излучением более высокой энергии. Учесть влияние рассеянного излучения можно при одновременном измерении в нескольких энергетических интервалах. Пренебречь влиянием рассеянного излучения можно только при определении содержания Th по линии 2,62 МэВ.

Измерения на полупроводниковом гамма-спектрометре. Большая разрешающая способность полупроводниковых детекторов позволяет хорошо разрешать отдельные линии в низкоэнергетической части спектра γ -излучения (табл. 4.1, рис. 4.8).

Таблица 4.1

Основные линии спектра для анализа на полупроводниковом гамма-спектрометре

| Энергия γ -излучения, кэВ | Излучатель | Энергия γ -излучения, кэВ | Излучатель |
|----------------------------------|-------------------|----------------------------------|------------------|
| Урановый ряд | | Актиноурановый ряд | |
| 63 | ^{238}U | 143 | ^{235}U |
| 186,2 | ^{226}Ra | 185,7 | ^{235}U |
| 205 | RaB | | |
| 352 | RaB | Ториевый ряд | |
| 809 | RaC | 209 | MaTh_1 |
| 1120 | RaC | 609 | ThC'' |
| | | 968 | ThC |
| | | 960 | ThC |

^{238}U не является γ -излучателем, но его можно определить по UX_1 (линия 63 кэВ) или по ^{235}U (линии 143 и 185,7 кэВ), так как в природных условиях с первым он всегда находится в радиоактивном равновесии, а со вторым – в определенном соотношении. Для определения Rn можно использовать любую линию одного из короткоживущих продуктов его распада. Th можно определить по любой линии MsTh_2 или ThC'' , так как он находится с ними в радиоактивном равновесии. Калий определяют по γ -излучению изотопа ^{40}K с энергией 1,46 МэВ.

^{226}Ra можно определить только по линии 186,2 кэВ, но при разрешении спектрометра в 2 кэВ эта линия сливается с линией 185,7 кэВ, принадлежащей ^{235}U . Поэтому, определив сначала содержание урана Q_U , содержание радия Q_{Ra} рассчитывают по формуле

$$Q_{\text{Ra}} = (Q_{185} - aQ_U) / (1 - a) \quad (4.26)$$

где Q_{185} — суммарное содержание U и Ra, определенное по линиям 185,7—186,2 кэВ, выраженное в процентах равновесного U; a — доля γ -излучения U в суммарном излучении по линиям 185,7—186,2 кэВ. Коэффициент a не зависит ни от объема, ни от эффективности регистрации ППД.

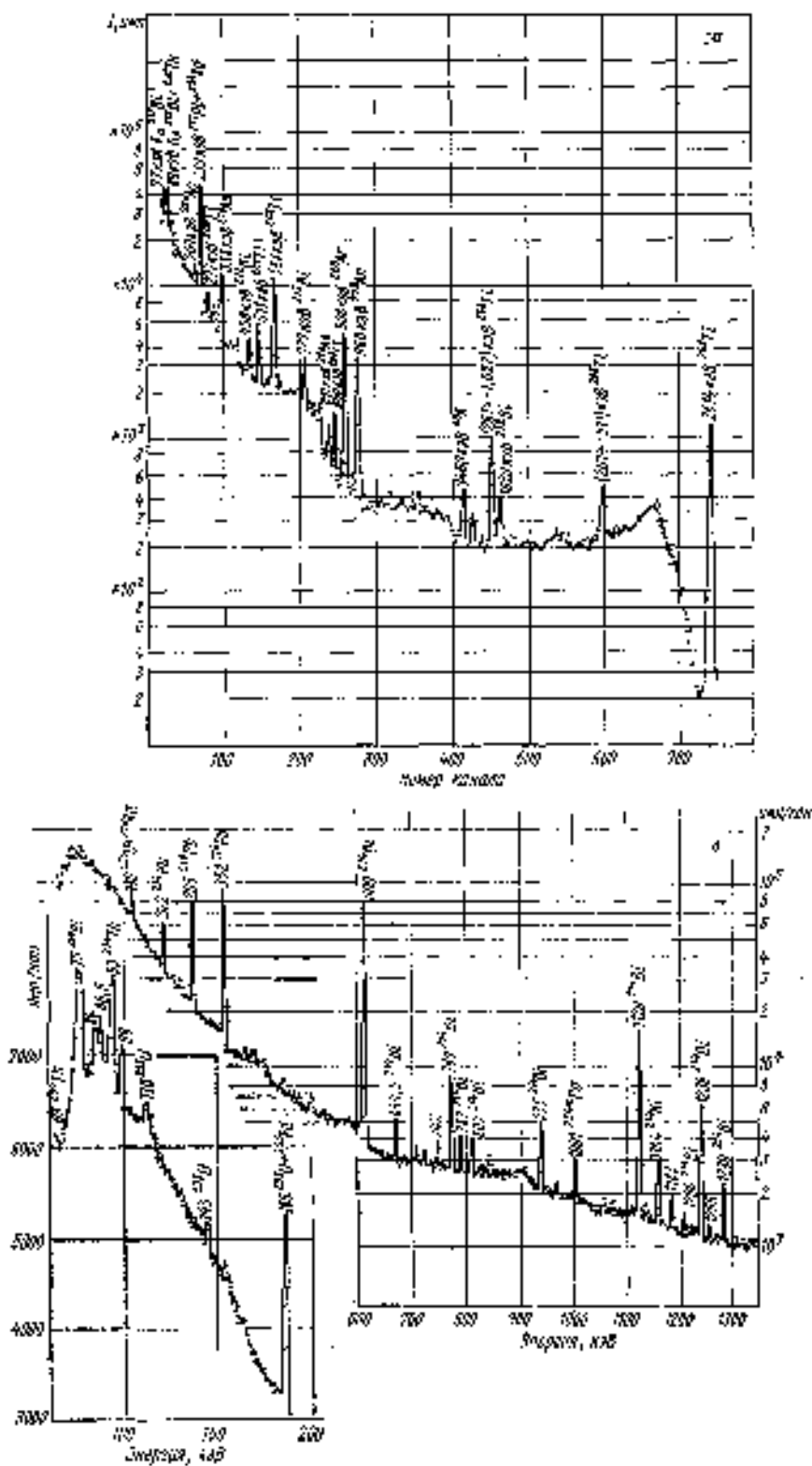


Рис. 4.8. Спектры γ -излучения ториевой и урановой руд, снятые на полупроводниковом спектрометре

Высокое разрешение гамма-спектрометров с полупроводниковыми детекторами позволяет разделять близкие по энергии линии и отделять их от фона, создаваемого комптоновским рассеянием в детекторе.

Вместе с тем при использовании сцинтилляционного спектрометра далеко не всегда удается добиться хорошего разрешения отдельных линий излучения. При этом возможна такая организация измерений, при которой эффективность регистрации нуклидов будет оптимальной.

Анализ четырехкомпонентных проб. Для анализа на U, Ra, Th и K необходимо выполнить четыре измерения пробы при таких условиях, чтобы в каждом максимально выделялось излучение одного из определяемых элементов.

Анализ четырехкомпонентных проб удобно проводить γ – спектрометрическим методом.

Для этого в спектре выделяют участки, характерные для каждого из исследуемых нуклидов. Скорость счета в каждом участке спектра будет связана с активностью нуклидов Q, содержащихся в пробе. При этом скорость счета в группе каналов будет обусловлена наличием как основного для этой группы нуклида, так и рассеянным излучением от других нуклидов и других линий излучения.

Система уравнений, позволяющая определить четыре элемента, имеет вид

$$\begin{cases} I_1 = a_1 A_U + b_1 A_{Rn} + c_1 A_{Th} + d_1 A_K \\ I_2 = a_2 A_U + b_2 A_{Rn} + c_2 A_{Th} + d_2 A_K \\ I_3 = a_3 A_U + b_3 A_{Rn} + c_3 A_{Th} + d_3 A_K \\ I_4 = a_4 A_U + b_4 A_{Rn} + c_4 A_{Th} + d_4 A_K \end{cases} \quad (4.27)$$

Для стандартных проб с различными коэффициентами радиоактивного равновесия и эманирования численные значения коэффициентов a, b, c и d разные, поэтому их экспериментально определяют для каждого типа стандартных проб. Решение системы (4.17) относительно искомым величин приводит к формулам вида

$$\begin{cases} A_U = m_1 I_1 + n_1 I_2 + k_1 I_3 + l_1 I_4 \\ A_{Rn} = m_2 I_1 + n_2 I_2 + k_2 I_3 + l_2 I_4 \\ A_{Th} = m_3 I_1 + n_3 I_2 + k_3 I_3 + l_3 I_4 \\ A_K = m_4 I_1 + n_4 I_2 + k_4 I_3 + l_4 I_4 \end{cases} \quad (4.28)$$

где коэффициенты m , n , k , l зависят от спектральной чувствительности применяемого детектора.

Анализ трехкомпонентных проб аналогичен анализу четырех-компонентных, но более прост, так как в этом случае достаточно решения системы трех уравнений и, следовательно, трех измерений каждой пробы. Трехкомпонентный анализ проводят на содержание Ra, Th и K, если в руде не нарушено радиоактивное равновесие, или на содержание U, Ra и Th в уран-ториевой руде с нарушенным равновесием в ряду U, но с пренебрежимо малым содержанием K.

Решение системы уравнений (4.17) может достоверно отразить изотопный состав проб, если при составлении системы и калибровке системы были учтены все радионуклиды, присутствующие в пробе. Правильность составления системы уравнений можно проверить следующим образом. В число определяемых

нуклидов могут быть добавлены один или два гипотетических изотопа со спектром гамма-излучения, отличающимся от спектров выбранных радионуклидов. Если идентификация состава излучателей проведена правильно, то активность гипотетического радионуклида в пределах погрешности должна быть близка к нулю, а активность других нуклидов останется без изменений. Присутствие в пробе непредусмотренного ранее радионуклида приведет к искажению спектра гамма излучения и значимому отличию активности гипотетического нуклида от нуля.

Глава 5. ИЗМЕРЕНИЕ ОБЪЕМНОЙ АКТИВНОСТИ РАДИОАКТИВНЫХ ГАЗОВ

5.1. Измерение объемной активности инертных радиоактивных газов методом счета частиц и ионизационным методом

Одна из основных задач контроля загрязненности воздушной среды — получение оперативной информации, на основании которой можно принять объективные и обоснованные решения о нормализации радиационной обстановки и условий труда. В этих целях в учреждениях на участках, где возможны поступления радиоактивных веществ в воздух рабочих помещений, в зависимости от конкретных условий должен проводиться непрерывный или периодический контроль объемной активности радиоактивных веществ в воздухе.

Наряду с этим в задачу служб радиационной безопасности должны входить систематические исследования, направленные на выявление источников загрязнения воздушной среды, характерных для технологического процесса, и на разработку технических и организационных мероприятий по улучшению условий труда персонала.

Следует отметить, что результаты измерения объемной активности радиоактивных веществ в воздухе, как правило, не могут дать точной количественной оценки фактического внутреннего облучения людей. В лучшем случае результаты таких измерений могут служить для оценки верхней границы возможных значений индивидуальных доз внутреннего облучения. Такая оценка всегда носит вероятностный характер и в силу специфики объекта контроля сопровождается значительной погрешностью, требующей введения больших коэффициентов запаса для гарантии суждения о безопасных условиях труда. Поэтому решающим, безусловно, главным критерием для оценки облучаемости персонала являются прямые измерения содержания или поступления радиоактивных веществ в организм, осуществляемые при помощи счетчиков излучения человека или методами биофизического контроля.

При выборе критериев степени радиационной опасности газов необходимо знать факторы, влияющие на формирование тканевой дозы в теле человека. Эти факторы зависят от закономерности накопления, распределения и выведения радиоактивных газов из организма, радиационных характеристик газов и других моментов.

В табл. 5.1 приведены сведения о наиболее часто применяемых радиоактивных нуклидах, которые могут находиться в парообразном и газообразном состоянии.

Таблица 5.1

Наиболее часто применяемые нуклиды, которые могут находиться в парообразном и газообразном состоянии

| Изотоп | Период полураспада | Максимальная энергия, МэВ | Энергия квантов, МэВ |
|---------------------------|--------------------|-------------------------------|---|
| ^3H | 12,26 года | 0,0186 | |
| ^{14}C | 5730 л | 0,156 | |
| ^{41}Ar | 1,83 ч | 2,49 (0,80%) 1,198 (99,2%) | 1,29 (99%) |
| ^{85}Kr | 10,76 года | 0,67 | 0,54 (0,4) 0,15 (74%), 0,3 (13%) |
| ^{87}Kr | 76 мин | 3,8 | 0,4 (84%), 0,85 (16%) 2,52 (35%) |
| ^{88}Kr | 2,8 ч | 2,8 | 0,166 (7%), 0,191 (35%) 0,36 (5%), 0,85 (23%) 1,55 (14%), 2,19 (18%) 2,4 (35%) |
| ^{89}Kr | 3,18 мин | 4 | Сложный спектр |
| ^{133}Xe | 5,27 дня | 0,346 | 0,081 (37%) |
| $^{133\text{m}}\text{Xe}$ | 2,3 > | — | 0,233 (14%) |
| ^{135}Xe | 9,14 ч | 0,92 | 0,25 (91%), 0,61 (3%) |
| $^{135\text{m}}\text{Xe}$ | 15,16 мин | — | 0,527 (80%) |
| ^{137}Xe | 3,9 мин | 4,1 | 0,455 (33%) |
| ^{138}Xe | 17,5 мин | 2,4 | Сложный спектр |
| ^{131}I | 8,05 дня | 0,86 | 0,08 (2,6%), 0,28 (5,4%), 0,36 (82%), 0,63 (6,8%), 0,72 (1,6%) |
| ^{132}I | 2,25 дня | 2,12 | Сложный спектр |
| ^{133}I | 20,3 дня | 1,27 | 0,53 (90%) |
| ^{135}I | 6,68 ч | 1,4 | Сложный спектр |
| ^{222}Rn | 3,8 дня | 5,48 | Сложный спектр с учетом продуктов распада |

Исходя из данных, представленных в табл 5.1. видно, что на практике часто приходится определять содержание в воздухе рабочих помещений или в вентиляционных выбросах инертных радиоактивных газов (изотопов аргона, криптона, ксенона и радона), а также газообразных соединений изотопов йода и некоторых других радионуклидов.

В отличие от проб диспергированного вещества, при пробоотборе газов нет проблемы обеспечения изокинетических условий. **Задача о представительности контроля сводится главным образом к правильному сбору всех компонентов в образец, подлежащих измерению.** Таким образом, пробу радиоактивных газов всегда предпочтительнее отбирать в замкнутую емкость, что гарантирует отсутствие какой-либо сепарации отдельных газообразных компонентов.

Объемная активность радиоактивного газа в воздухе может быть определена методами, основанными на счете отдельных частиц или квантов и на измерении

ионизационного эффекта. Для счета отдельных частиц или квантов используют **счетчики внутреннего наполнения**. В этом случае газообразный препарат вводится непосредственно в детектор или детектор погружается (частично или полностью), в исследуемый газ. Оценка объемной активности по ионизационному эффекту осуществляется при помощи так называемых ионизационных камер с газовой стенкой или камер внутреннего наполнения.

Наибольшая точность измерения объемной активности газов достигается при использовании счетчиков внутреннего наполнения. В этих случаях радиоактивный газ вводят непосредственно в рабочий объем, что обеспечивает регистрацию практически каждого акта распада. Эти измерения проводят на газоразрядных счетчиках цилиндрической формы, работающих в пропорциональной или в гейгеровской области. Погрешность измерения не превышает $\pm 3\%$. Данный метод применяется для паспортизации газообразных препаратов. Из-за сложности эксплуатации, необходимости специального оборудования этот способ не нашел применения в санитарной практике.

В практике контроля содержания радиоактивных газов в воздухе рабочих помещений широкое распространение получили **складные камеры, оснащенные счетчиками β -излучения** и засасывающие пробу по принципу мехов. Входное отверстие таких камер снабжается аэрозольным фильтром задерживающим практически всю дисперсную фазу. Вопрос о представительности контроля с помощью такой камеры в дальнейшем сводится к правильной радиометрии полученной объемной пробы. При этом в ряде случаев следует корректно оценить эффект сорбции радионуклидов внутренними поверхностями камеры. Такой эффект может оказаться значимым в некоторых измерениях объемной активности газообразных продуктов деления, имеющих радиоактивные дочерние элементы.

Как правило, это устройство состоит из цилиндрической емкости, заполняемой исследуемым газом, и торцового счетчика, расположенного в центре основания этого цилиндра. Для этих условий градуировочный коэффициент определяется при помощи абсолютного метода на основании следующих допущений:

- 1) поглощение β -частиц в веществе подчиняется экспоненциальному закону;
- 2) детектор точечный (радиус входного окна счетчика в 5 раз меньше радиуса цилиндра);
- 3) рассеяние β -частиц от стенок цилиндра мало и им можно пренебречь;
- 4) радиоактивный газ равномерно распределен по цилиндру.

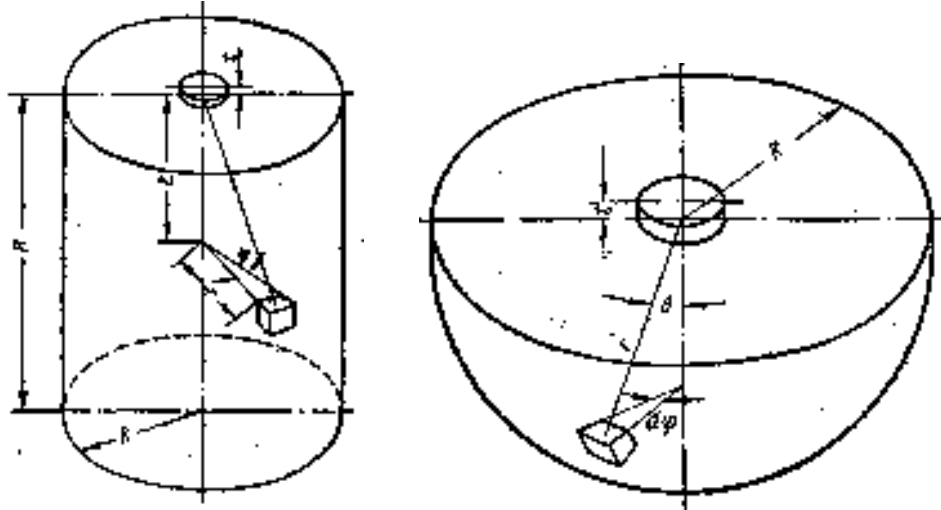


Рис. 5.1. К расчету числа β -частиц, попадающих во входное окно торцового счетчика из газонаполненного цилиндра и полусферы

Тогда выражение для доли β -излучения газообразного источника, регистрируемой счетчиком (η), записывается в следующем виде (рис. 5.1).

$$\eta = S \int_0^H \int_0^R \int_0^{2\pi} \frac{e^{-\mu\sqrt{z^2+r^2}} \left(1 + \frac{t}{z}\right) r z dr dz d\varphi}{4\pi(z^2 + r^2)^{3/2} \pi r^2 H} \quad (5.1)$$

где S — площадь входного окна счетчика, μ — коэффициент ослабления β -излучения, t — толщина входного окна счетчика H и R — высота и радиус цилиндра соответственно. Интегрирование уравнения по r и φ дает

$$\eta = \frac{S}{2\pi R^2 H} \int_0^H \left\{ \frac{e^{-\mu(z+t)}}{z} - \frac{e^{-\mu\sqrt{z^2+R^2}} \left(1 + \frac{t}{z}\right)}{\sqrt{z^2 + R^2}} + \right. \\ \left. + \mu \left(1 + \frac{t}{z}\right) E_i[-\mu(z+t)] - \mu \left(1 + \frac{t}{z}\right) \cdot E_i \left[-\mu \left(1 - \frac{t}{z}\right) \sqrt{z^2 + R^2} \right] \right\} z dz \quad (5.2)$$

Уравнение (5.1a) не может быть выражено в элементарных табулированных функциях, поэтому для его решения был использован численный метод интегрирования. Расчеты были проведены для $t=5$ мг/см² (толщина входного окна, типичная, для серийных торцовых счетчиков) и некоторых значений R и H . Численные значения градуировочных коэффициентов, рассчитанные для различных размеров цилиндра в зависимости от энергии β -частиц, приведены в табл. 5.2.

Таблица 5.2.

Численные значения коэффициента η [10^{-4} имп./($\text{расп}\cdot\text{см}^2$)]

| Радиус цилиндра, см | Высота цилиндра, см | $E_{\beta}, \text{МэВ}$ | | | | | | | | | | | | |
|---------------------|---------------------|-------------------------|------|-----|-----|------|------|-----|------|-----|------|------|------|------|
| | | 0,3 | 0,4 | 0,5 | 0,6 | 0,7 | 0,8 | 0,9 | 1,0 | 1,2 | 1,5 | 2,0 | 2,5 | 3,0 |
| 10 | 20 | 1,1 | 1,8 | 2,8 | 3,4 | 3,7 | 4,1 | 4,4 | 4,5 | 4,8 | 5,0 | 5,2 | 5,3 | 5,3 |
| 13 | 38 | 0,6 | 1,0 | 1,3 | 1,6 | 1,8 | 2,0 | 2,1 | 2,3 | 2,4 | 2,7 | 2,8 | 2,9 | 2,9 |
| 15 | 30 | 0,7 | 1,3 | 1,9 | 2,4 | 2,7 | 3,0 | 3,3 | 3,4 | 3,7 | 3,9 | 4,2 | 4,3 | 4,3 |
| 25 | 50 | 0,15 | 0,23 | 0,3 | 0,4 | 0,46 | 0,53 | 0,6 | 0,64 | 0,7 | 0,77 | 0,82 | 0,85 | 0,85 |

Расчеты были осуществлены для толщины входного окна счетчика, равной 5 мг/см^2 . Как видно из приведенных данных, значение коэффициента η заметно возрастает с увеличением энергии до 1 МэВ. При дальнейшем увеличении энергии величина коэффициента η изменяется незначительно, что объясняется малым поглощением β -излучения в воздухе и материале окна счетчика.

Используя указанные коэффициенты, в практических условиях можно измерять содержание газов в воздухе производственных помещений.

Сконструировать переносную камеру цилиндрической формы в практических условиях не представляет особого труда.

Основание камеры выполняется из оргстекла, боковая поверхность — из полиэтилена, благодаря этому камера легко складывается. В центре верхнего основания имеется отверстие, в котором крепится торцовый счетчик. Исследуемый воздух засасывается в камеру при ее раскладывании через отверстие в верхнем основании.

Объемную активность газа определяют по формуле:

$$A_V = \frac{I_{\beta}}{\eta \cdot S \cdot V} \quad (5.3)$$

где A_V — объемная активность газа в камере, Бк/л; I_{β} — скорость счета β -частиц за вычетом фона, имп/с; η — градуировочный коэффициент (см. табл. 5.2); S — площадь входного окна счетчика, см^2 ; V — объем цилиндрической камеры в литрах.

В табл. 5.3 приведены значения чувствительности цилиндрической камеры со счетчиком МСТ-17 и минимально измеримые активности различных газов. Значения минимальной активности приведены при фоне 40 имп/мин, применение таких камер для радиометрии ^3H и ^{14}C возможно, однако чувствительность данного метода весьма незначительна. Цилиндрические камеры в практических условиях используются при радиометрии газов с энергией более 0,3 МэВ.

Таблица 5.3

Чувствительность цилиндрической камеры с торцевым счетчиком МСТ-17 и минимально измеримые активности различных газов

| Изотоп | $\frac{Q}{N_{\beta}} \cdot 10^{-11} \frac{\text{Кп/л}}{\text{имп/мин}}$ | $Q_{\text{мин}} \cdot 10^{-9}, \text{Кп/л}$ |
|--------------------------|---|---|
| ^{41}Ar | 1,9 | 0,8 |
| $^{85\text{m}}\text{Kr}$ | 2,4 | 1,0 |
| ^{85}Kr | 2,7 | 1,1 |
| ^{87}Kr | 1,7 | 0,7 |
| ^{86}Kr | 2,1 | 0,8 |
| ^{133}Xe | 7,2 | 2,9 |
| ^{135}Xe | 2,2 | 0,9 |

Следует указать, что наряду с цилиндрическими камерами можно применять камеры полусферической формы, торцевой счетчик в которых располагается в центре плоского основания (рис. 5.1).

$$\eta_0 = \frac{\int_0^{2\pi R} \int_0^{\pi/2} \int_0^{\pi/2} e^{-\mu \left(r + \frac{t}{\cos \theta} \right)} \sin \theta \cos \theta r^2 dr d\varphi d\theta}{4\pi r^3 \cdot \frac{2}{3} \pi R^3} \quad (5.4)$$

После интегрирования этого уравнения по φ и r и подстановки соответствующих пределов имеем

$$\eta_0 = \frac{1 - e^{-\mu R}}{\frac{4}{3} \pi R^3 \mu} \int_0^{\pi/2} e^{-\frac{\mu t}{\cos \theta}} \sin \theta \cos \theta d\theta \quad (5.5)$$

Интеграл, входящий в это уравнение, выражается через функцию $E_i(-\mu t)$. Тогда окончательно имеем

$$\eta_0 = \frac{1 - e^{-\mu R}}{\frac{8}{3} \pi R^3 \mu} \left[e^{-\mu t} - \mu t e^{-\mu t} - (\mu t^2) E_i(-\mu t) \right] \quad (5.6)$$

Таким образом, для измерительного устройства, состоящего из полусферы с торцевым счетчиком в центре плоского основания, величина градуировочного коэффициента η_0 выражается через табулированные функции исходных параметров.

В табл. 5.4 приведены значения градуировочных коэффициентов для различных энергий и размеров полусферических камер. Толщина входного окна счетчика 5 мг/см^2 .

Таблица 5.4
Значения градуировочного коэффициента η [10^{-4} имп./ $(\text{расп}\cdot\text{см}^2)$] для полусферических камер

| Радиус, см | $E_{\beta}, \text{МэВ}$ | | | | | | | | |
|---------------|-------------------------|-----|-----|-----|-----|------|------|------|------|
| | 0,3 | 0,4 | 0,5 | 0,6 | 0,8 | 1,0 | 1,4 | 2,0 | 3,0 |
| 10 | 3,1 | 5,2 | 7,0 | 8,0 | 8,6 | 10,0 | 11,0 | 11,4 | 11,6 |
| 15 | 1,13 | 2,0 | 2,8 | 3,2 | 4,0 | 4,2 | 4,4 | 5,0 | 5,2 |
| 20 | 0,46 | 1,0 | 1,4 | 1,6 | 2,0 | 2,3 | 2,5 | 2,7 | 3,0 |
| 25 | 0,27 | 0,6 | 0,8 | 1,0 | 1,2 | 1,3 | 1,5 | 1,7 | 1,7 |

Для отбора газообразных проб из технологических магистралей, емкостей и т. п. часто используют предварительно вакуумированные емкости. Такую емкость подсоединяют через переходной вентиль (клапан) к трубопроводу, и пробу получают после открывания вентиля за счет перехода газа самотеком в пробоотборную емкость. Главная особенность такого отбора пробы – это переменная линейная скорость поступления газа в емкость, что может решающим образом отразиться на представительности пробы в случае, если она предназначена не только для анализа газов, но и дисперсной фазы.

Тем не менее, для разовых периодических измерений могут быть использованы *вакуумированные ионизационные камеры*, где соотношение между объемной активностью газа во внутреннем объеме камеры $A_V \equiv C_k$ и ионизационным током i_k имеет вид

$$i_k = \beta f C_k V \bar{E}_{\beta} e / w \quad (5.7)$$

где β – доля энергии β -частиц, теряемая в объеме камеры на ионизацию; f – эффективность собирания ионов; V – объем камеры; \bar{E}_{β} – средняя энергия β -частиц; e – заряд электрона; w – средняя работа ионообразования.

Для непрерывного контроля за содержанием газообразных продуктов в воздухе рабочих помещений и вентиляционных выбросах широко используют *проточные камеры*. При таком способе контроля накопление радионуклидов на внутренних поверхностях камеры и на аэрозольном фильтре может существенно повлиять на получаемые результаты. Исключение этого фактора достигается конструктивно при помощи защитных экранов, ослабляющих γ -излучение фильтров, и (или) систематической оценкой аэрозольного фона с последующей заменой фильтров и дезактивацией внутренних поверхностей проточной камеры.

В проточные ионизационные камеры контролируемый воздух подается принудительно с помощью прокачных устройств, и в общем случае ионизационный ток зависит не только от уровня объемной активности A_V также и от скорости прокачки воздуха v через камеру.

Действительно, дифференциальное уравнение для активности во внутреннем объеме проточной камеры A_k имеет вид

$$\frac{dA_K}{dt} = A_V v \cdot \exp\left(-\frac{\lambda V}{v}\right) - A_K \frac{v}{V} \quad (5.8)$$

где $A_V v$; $A_K v/V$ — активность, поступающая в камеру, и активность, уносимая из нее с потоком воздуха, соответственно; $\exp(-\lambda V/v)$ — множитель, учитывающий уменьшение поступающей активности в результате распада за среднее время нахождения воздуха в камере \bar{t} , равное $\bar{t} = \lambda/v$. Решение этого уравнения при начальных условиях $t=0$, $A_K = 0$ имеет вид

$$A_K = A_V V \exp\left(-\frac{\lambda V}{v}\right) \left[1 - \exp\left(-\frac{vt}{V}\right)\right] \quad (5.9)$$

Учитывая, что практически при любых, даже самых малых скоростях прокачки

$$\frac{\lambda V}{v} = 0$$

уравнение (5.3) можно записать в виде

$$A_K = A_V V \left[1 - \exp\left(-\frac{vt}{V}\right)\right] \quad (5.10)$$

и в установившемся режиме $\exp\left(-\frac{vt}{V}\right) \ll 1$, активность в камере будет пропорциональна объемной активности в контролируемом воздухе и объему камеры, т. е.

$$A_K = A_V V; \quad (5.11)$$

Таким образом, скорость прокачки воздуха при фиксированном объеме камеры практически будет оказывать влияние только на время установления активности в камере, т. е. на инерционность метода, что необходимо учитывать при измерении меняющихся во времени объемной активности газа в воздухе.

При определении соотношения между ионизационным током и объемной активностью газа в воздухе для более строгого анализа работы проточной ионизационной камеры, помимо образования ионов за счет активности газа в ней, необходимо учитывать также эффект поступления и уноса ионов с потоком прокачиваемого воздуха.

Действительно, в камере в единицу времени без учета естественного фона, β -излучением будет создаваться n_0 пар ионов, равное $n_0 = \beta q_0 V$, где $q_0 = A_V \bar{E} / w$. С потоком воздуха в камеру дополнительно будет поступать n_1 пар ионов, равное $n_1 = v \sqrt{q_0 / \alpha}$; где $\sqrt{q_0 / \alpha}$ — установившаяся концентрация свободных ионов, создаваемая β -излучением (для воздуха при наличии в нем трития $\alpha = 1,66 \cdot 10^{-6} \text{ см}^3/\text{с}$); и уноситься с потоком воздуха n_2 пар ионов, равное $n_2 = \eta(\omega) n_0$, где $\eta(\omega)$ — коэффициент, зависящий от конструкции камеры и режимов работы ее. В этом случае ионизационный ток камеры i_K будет равен

$$i_K = \beta q_0 V \left[1 + \frac{v}{V} \frac{1}{\sqrt{q_0 \alpha}} - \eta(\omega)\right] \quad (5.12)$$

Таким образом, в общем случае ионизационный ток камеры зависит от скорости прокачки воздуха (см. второй и третий член в скобках).

Однако соответствующим выбором принципиальной схемы установки контроля, режимов работы ионизационной камеры эту зависимость можно свести до пренебрежимо малой величины.

Для расчета величины ионизационного тока в камерах внутреннего наполнения необходимо иметь сведения об энергетическом и угловом распределении β -частиц, рассеянных от стенок камеры, плотности ионизации в поле точечного источника β -излучения.

Были рассчитаны значения ионизационной эффективности и минимальной чувствительности для камер внутреннего наполнения различной конструкции. Эти данные приведены в табл. 5.5.

На основании представленных в табл. 5.5 материалов можно сделать вывод, что для получения предельной чувствительности измерения объемной активности радиоактивных газов, при помощи камер внутреннего наполнения не обязательно использовать камеры большого объема. Например, минимально измеримая активность при помощи алюминиевой камеры объемом 70 л) и медной сферической ($V=7,2$ л) практически одинакова. В данном случае на величину минимально измеримой активности влияет материал стенок камер (медь), использование которого повышает эффект многократного рассеяния β -частиц.

Таблица 5.5.

Ионизационная эффективность и минимально измеримая объемная активность радиоактивных газов камерами внутреннего наполнения

| Форма и размеры камер, материал стенок | Ионизационная эффективность $I/\alpha \cdot V, 10^{-6} \text{ А/Ки}$ | $Q_{\text{мин}}$, Ки/л |
|---|---|----------------------------|
| Цилиндр из алюминия: $R=45$ мм, $H=25$ мм, $V=1,6$ л | 21 (для ^{41}Ar) | $2 \cdot 10^{-9}$ |
| Цилиндр из алюминия ¹ : $R=130$ мм, $H=380$ мм, $V=20$ л (ДЗ-20) | 5,0 (для ^{41}Ar) | 10^{-9} |
| Цилиндр из алюминия ¹ : $R=200$ мм, $H=560$ мм, $V=70$ л (ДЗ-70) | 7,0 (для β -активных газов с энергией от 0,3 до 2,2 МэВ) | $7 \cdot 10^{-10}$ |
| Цилиндр из нержавеющей стали: $R=57$ мм, $H=150$ мм, $V=1,5$ л | 4,0 (для β -активных газов с энергией от 0,167 до 1,7 МэВ) | 10^{-9} |
| Сфера из меди: $R=120$ мм, $V=7,2$ л | 7,2 ^{14}C 8,7 ^{41}Ar 9,9 ^{85}Kr | $6 \cdot 10^{-10}$ |

Радиометрия β -активных газов при помощи ионизационных камер с газовой стенкой также основана на измерении объемной активности газа по величине ионизационного тока. Количество энергии, выделенной в единичном объеме, равно количеству энергии, поглощенной в этом объеме. Метод измерения при

помощи ионизационных камер с газовой стенкой используется только для измерения газов с малой энергией β -излучения (^3H , ^{14}C).

Конструкция такой камеры может быть выполнена в виде двух коаксиально расположенных цилиндров (центральный – собирающий и внешний). Эти цилиндры изготавливаются из материала с малым атомным номером (алюминий и т. д.).

Электронное равновесие в такой камере обеспечивается путем равномерного распределения измеряемого газа в воздухе. Измерительный объем камеры должен быть ограничен сеткой и окружен смесью воздуха и радиоактивного газа, с толщиной равной или больше значения максимального пробега β -частиц в воздухе. Ионизационный ток в камере с газовой стенкой равен:

$$I = 3,7 \cdot 10^{10} \cdot 1,6 \cdot 10^{-19} A_V \frac{E_\beta}{w} \quad (5.13)$$

где I – ионизационный ток в амперах; $3,7 \cdot 10^{10}$ — число распадов в 1 с, соответствующее 1 кюри; $1,6 \cdot 10^{-19}$ – заряд электрона; V – объем камеры в литрах; A_V – объемная активность измеряемого газа, Ки/л; E_β — энергия β -частиц, МэВ; w – работа образования паров ионов в воздухе, равная $3,3 \cdot 10^{-5}$ МэВ.

Важным преимуществом сетчатых ионизационных камер является свободный диффузионный обмен измеряемого воздуха. Это дает возможность осуществлять непрерывный контроль объемной активности радиоактивных газов в воздухе производственных помещений без использования специальных прокачивающих устройств.

Однако при измерении объемной активности газов с энергией β -спектра более 1 МэВ такие камеры не могут быть использованы на практике, так как для обеспечения ионизационного равновесия необходимо значительно увеличить толщину слоя газовой стенки. Например, при измерении объемной активности ^{41}Ar для обеспечения равновесия минимальное расстояние от стенки до измеряемого объема составляет 400 см (при нормальном атмосферном давлении).

В связи с этим применение сетчатых ионизационных камер для измерения объемной активности радиоактивности газов в широком энергетическом интервале неприемлемо. В подобных случаях используются камеры внутреннего наполнения.

Вообще решение *задачи совместного отбора проб газов и дисперсной фазы, как правило, сталкивается с противоречивыми требованиями*. Особенно большие затруднения возникают в случае, когда для повышения чувствительности измерений необходимо получить компонентную пробу с предварительным концентрированной радиоактивных газов.

Концентрирование инертных радиоактивных газов можно осуществить единственным способом — путем пропускания контролируемой среды через сорбент (например, через активированный уголь), охлаждаемый до низкой температуры. Практически 100%-ное улавливание достигается при охлаждении с помощью жидкого азота. Во всех случаях, концентрируя газообразные радиоактив-

ные вещества, необходимо четко контролировать коэффициент возможного проскока газов через улавливающий элемент. Наиболее предпочтителен такой способ контроля, когда происходит полный сбор газа, выходящего из улавливающего элемента с исследующей оценкой его радиоактивности.

5.2. Определение выброса в атмосферу ^{131}I

Принцип метода. Метод основан на физической сорбции молекулярного йода и его соединений активированным углем или на химической сорбции йода некоторыми соединениями серебра, нанесенными на различные материалы. Для определения концентрации ^{131}I часть контролируемого газового потока непрерывно прокачивается через выбранный сорбент, активность которого по завершении прокачки определяют γ -спектрометрическим методом.

Метод физической сорбции радиойода активированным углем применим в отсутствие окислов азота и паров кислот либо при незначительном их содержании в контролируемом потоке газа. Присутствие окислов азота (более 3% по объему) и паров кислот приводит к ухудшению улавливания радиойода углем. В этих случаях возможно также самовозгорание угля. Поэтому при отборе проб из химически агрессивных газов (особенно при содержании окислов азота более 3%) применяется метод химической сорбции радиойода соединениями серебра.

Материалы и аппаратура для отбора проб. Аэрозольная фракция радиойода, наряду с аэрозолями других элементов, улавливается фильтрующими материалами ФП. В качестве физических сорбентов для улавливания паровой фракции радиойода применяют активированные угли марок АГ-3, СКТ и др.

Из химических сорбентов рекомендуются силикагель марки КСМ, пропитанный 10%-ным раствором азотнокислого серебра, и фильтрующе-сорбирующий аналитический материал «Май». Возможно применение других материалов при условии определения их эффективности для конкретной смеси газов.

Для отбора проб активированный уголь, силикагель и фильтры помещают в колонки, кюветы и фильтродержатели различных конструкций, которые следует изготавливать из легко дезактивируемых материалов. Простейшим приспособлением для угля и силикагеля являются колонки. Их рекомендуется изготавливать из стекла или из металла.

Размеры колонок и других приспособлений для сорбентов выбирают из условия полноты улавливания радиойода из газового потока за время отбора пробы. В зависимости от физико-химических характеристик контролируемого газа практически полное улавливание йода обеспечивает слой угля от 15 до 50 см (колонки диаметром 2 см), слой силикагеля от 3 до 10 см или 3—5 фильтров из материала «Май». Если необходимо уменьшить высоту слоя сорбента, то целесообразно применять силикагель вместо активированного угля.

Отбор проб. Для отбора проб радиойода приспособление с сорбентом устанавливают в схеме отбора *после аэрозольных фильтров перед измерителем расхода газа (ротаметром или счетчиком)*. Фильтры из материала «Май» устанавливают в фильтродержателе с прокладками (металлические кольца толщи-

ной 3—5 мм). Наибольшая эффективность улавливания ^{131}I активированным углем достигается при 20—30° С, а материалами с соединениями серебра – при 200° С. Поэтому в случае отбора проб с помощью силикагеля или материала «Май» как сами сорбенты, так и поступающий на них газ, следует нагревать до температуры 200±5°С.

Распределение уловленного радиойода в слое сорбента в значительной степени зависит от влажности сорбента, поэтому при повышенной влажности активированный уголь и силикагель перед отбором пробы необходимо просушить. Для полного удаления влаги или избытка стабильного йода через силикагель пропускают чистый горячий воздух при температуре 100 – 150° С, уголь просушивают при 50—80° С. Оптимальная объемная скорость прокачки газа через сорбенты соответствует скорости фильтрации воздуха через аэрозольные фильтры. Линейная скорость газового потока через фильтры из материала «Май» не должна превышать 5 см/с.

Измерение активности ^{131}I и определение среднесуточной концентрации его в выбросе. Кроме ^{131}I , на активированном угле может сорбироваться некоторое количество инертных газов (криптона, ксенона), газообразные фракции рутения и сурьмы, а также короткоживущие нуклиды йода. Поэтому измерение активности ^{131}I рекомендуется проводить с помощью сцинтилляционного γ -спектрометра

В ходе подготовки измерений уголь рассыпают на отдельные порции в специальные чашки. Объем каждой порции выбирают в зависимости от активности уловленного ^{131}I с тем, чтобы загрузка не превышала 5000 имп./с. Для измерения секционную кювету устанавливают непосредственно на кристалл спектрометра. Фильтры «Май» и пробы силикагеля также измеряют в аналогичной геометрии.

Погрешность определения среднесуточной концентрации ^{131}I зависит от активности и в лучшем случае может составлять ±20%; пороговая чувствительность метода при использовании угля и силикагеля 0,74 Бк/м³, фильтров «Май» — 0,2 Бк/м³.

В тех случаях, когда известно, что на активированном угле собирается практически только ^{131}I (активностью остальных γ -излучателей можно пренебречь), можно применять экспрессный метод определения активности угольных колонок без рассыпания угля на отдельные порции — путем просматривания распределения активности по колонке сцинтилляционным счетчиком с кристаллом NaI(Tl) через коллиматор.

Для измерения абсолютной активности уголь или силикагель из колонки (после предварительного измерения экспрессным методом) рассыпают на отдельные порции и измеряют их с помощью γ -спектрометра. Затем активность всех порций суммируется и в результате получается $A_{абс}$. Коэффициент пересчета, связывающий количество зарегистрированных в экспресс методе импульсов с активностью радиойода в колонке определяется как

$$k_{сч} = \frac{A_{abc}}{\sum_{i=1}^n N(x_i)} \quad (5.14)$$

где A_{abc} — активность ^{131}I , находящегося в колонке; $N(x_i)$ — скорость счета при измерении i -го участка колонки; n — число измеренных участков колонки.

Работоспособность установки проверяют ежедневно при помощи источника γ -излучения, нанесенного на алюминиевую мишень с энергией γ -излучения близкой к энергии квантов ^{131}I . Мишень помещают перед окном коллиматора и находят соотношение между коэффициентом счета, определенным при градуировке, и от проверочного источника. При отклонении числа отсчетов проверочного источника от заданного при поверке значения более чем на $\pm 20\%$, проводят дополнительную внеочередную градуировку установки с помощью γ -спектрометра.

Фильтры из материала «Май» также могут быть измерены экспрессным методом. Для этого все фильтры помещают в пакет из кальки, который располагают перед окном коллиматора на соответствующей подставке. Для градуировки используют метод измерения с помощью γ -спектрометра. Погрешность определения среднесуточной концентрации ^{131}I при использовании экспрессного метода зависит от активности пробы и в лучшем случае может составлять $\pm 30\%$. Пороговая чувствительность экспресс-метода $\sim 3,5 \text{ Бк/м}^3$.

5.3. Измерение объемной активности трития в воздухе

Измерение активности трития связано с определенными трудностями, вызванными главным образом крайне низкой энергией его β -излучения ($E_{\text{макс}} = 18 \text{ кэВ}$) — наиболее низкой среди всех известных β -излучателей. Максимальный пробег β -частиц трития в веществе R настолько мал (в воздухе $R=5,7 \text{ мм}$), что практически исключает применение каких-либо пленок, отделяющих измеряемый объект от чувствительности объема измерительного прибора. Поэтому прямой метод контроля объемной активности трития в воздухе основывается на введении контролируемой среды во внутренний объем ионизационной камеры и измерении тока ее, создаваемого β -излучением трития.

С помощью двух ионизационных камер, на входе одной из которых поставлен влагопоглотитель, по разности показаний их можно оценивать концентрацию НТО ($A_V^{\text{НТО}}$) в воздухе ($A_V^{\text{НТО}} = A_V^{\Sigma} - A_V^{\text{НТ}}$). Однако в этом случае для повышения точности определения $A_V^{\text{НТО}}$ целесообразно использование дифференциальной камеры (рабочая, измеряющая A_V^{Σ} и компенсационная с влагопоглотителем, включенная встречно) с одним измерительным прибором.

На рис. 5.1 приведена структурная схема установки для отдельного контроля концентрации $A_V^{\text{НТ}}$ и $A_V^{\text{НТО}}$ в воздухе, состоящая из двух почти одинаковых

ветвей. Отличие заключается в том, что во второй ветви на входе ионизационной камеры дополнительно установлен влагопоглотитель 4.

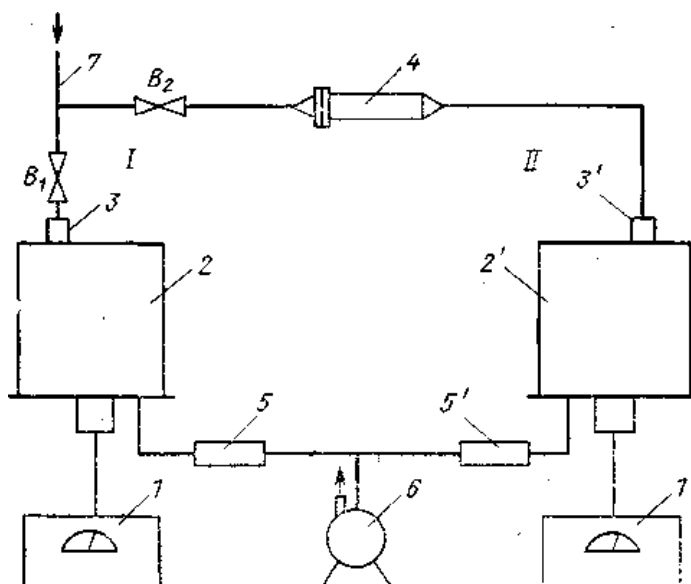


Рис. 5.2. Структурная схема установки для контроля концентрации трития в воздухе: Ветвь I — для измерения суммарной концентрации $A_V^\Sigma = A_V^{HTO} + A_V^{HT}$ - Ветвь II — для измерения концентрации НТ. 1; 1' — измерительный прибор; 2; 2' — ионизационная камера; 3; 3' — ионный фильтр; 4 — влагопоглотитель; 5, 5' — ротаметр; 6 — воздуходувка; B_1 — регулировочный вентиль; B_2 — запорный вентиль; 7 — воздухозаборный шланг

Первая ветвь предназначена для измерения суммарной концентрации НТ и НТО в воздухе. Во второй ветви НТО задерживается влагопоглотителем и измеряется концентрация только НТ.

На практике в зависимости от поставленной задачи приведенную на рис. 5.2 установку можно значительно упростить, исключив некоторые элементы. Так, например, при оперативном контроле в большинстве случаев достаточно измерить только суммарную концентрацию НТ и НТО в воздухе. Для измерения A_V^Σ достаточно одной (первой) ветви структурной установки, приведенной на рис. 5.2, описание которой приводится ниже.

При раздельном контроле НТ и НТО в качестве поглотителя может быть использована стеклянная или металлическая ловушка с эффективным путем воздушного потока 150—200 мм и объемом 4000 см³, наполненная силикагелем или синтетическими цеолитами типа NaA. Эта ловушка обеспечит улавливание влаги в течение 8 ч при скорости прокачки воздуха 50 л/мин и относительной влажности контролируемого воздуха 80% при 20° С.

Указанным выше методом возможно определение только достаточно больших значений объемной активности трития. Для контроля объемной активности НТО используются лабораторные методы с использованием измерений *методом жидкого сцинтиллятора*.

Окись трития НТО является сверхтяжелой водой и поведение ее в воздушной среде аналогично поведению атмосферной влаги. Поэтому методы контроля

концентрации НТО в воздухе рабочих помещений могут быть основаны на отборе проб атмосферной, влаги и измерении концентрации трития в ней. В практике дозиметрического контроля могут быть использованы методы, основанные на полном или частичном отборе атмосферной влаги из определенного объема контролируемого воздуха: вымораживание и барботирование.

Полученные пробы в виде конденсата атмосферной влаги или раствора его в дистиллированной воде измеряют на жидкостном сцинтилляционном счетчике. Пробы в большинстве случаев можно вводить в жидкий сцинтиллятор без дополнительной обработки. Предлагаемые методы контроля позволяют измерять среднюю объемную активность НТО A_V^{HTO} в воздухе рабочих помещений, в вентиляционных выбросах и в среде технологического оборудования за время отбора пробы в пределах от получаса до семи суток. Содержание элементарного трития, в 10^4 раз превышающее объемную активность НТО, не оказывает влияния на результаты измерений.

Метод вымораживания. Этот метод основан на вымораживании паров воды из контролируемого воздуха и измерении концентрации (активности) НТО в получаемом конденсате. При этом отбор проб может осуществляться как при прокачке воздуха через охлаждаемую ловушку, так и путем намораживания влаги на охлаждаемую металлическую пластину (стержень) с хорошей теплопроводностью.

В первом случае при полном улавливании влаги среднюю за время отбора пробы t концентрацию НТО в воздухе A_V^{HTO} можно вычислить по соотношению

$$A_V^{HTO} = \frac{A_m m}{V} \quad (5.15)$$

где A_m —удельная активность НТО в конденсате паров воды; m — количество конденсата в пробе; V — объем прокачанного через ловушку воздуха.

Однако полное улавливание паров воды связано с определенными трудностями.

Даже при использовании в качестве охладителя жидкого азота

($t_{\text{охл}} = -196^\circ \text{C}$) наблюдается заметный проскок воды через ловушку. При этом его значение сравнительно трудно поддается оценке. Поэтому для уменьшения погрешности измерения концентрации НТО в воздухе целесообразно одновременно с отбором пробы определять абсолютную влажность воздуха F г/м³. В этом случае при использовании прокачной ловушки или охлаждаемой пластины концентрацию НТО в воздухе можно определить по соотношению

$$A_V^{HTO} = A_m F \quad (5.16)$$

Таким образом, для определения концентрации НТО необходимо отобрать пробу воды из контролируемого воздуха, определить абсолютную влажность его и измерить концентрацию НТО в этой пробе.

Блок-схема установки с использованием вымораживающей ловушки и конструкция ловушки изображена на рис. 5.3. Элементы установки, указанные на рисунке, можно заменить другими с близкими характеристиками. Элементы соединяют при помощи резиновых медицинских или вакуумных шлангов.

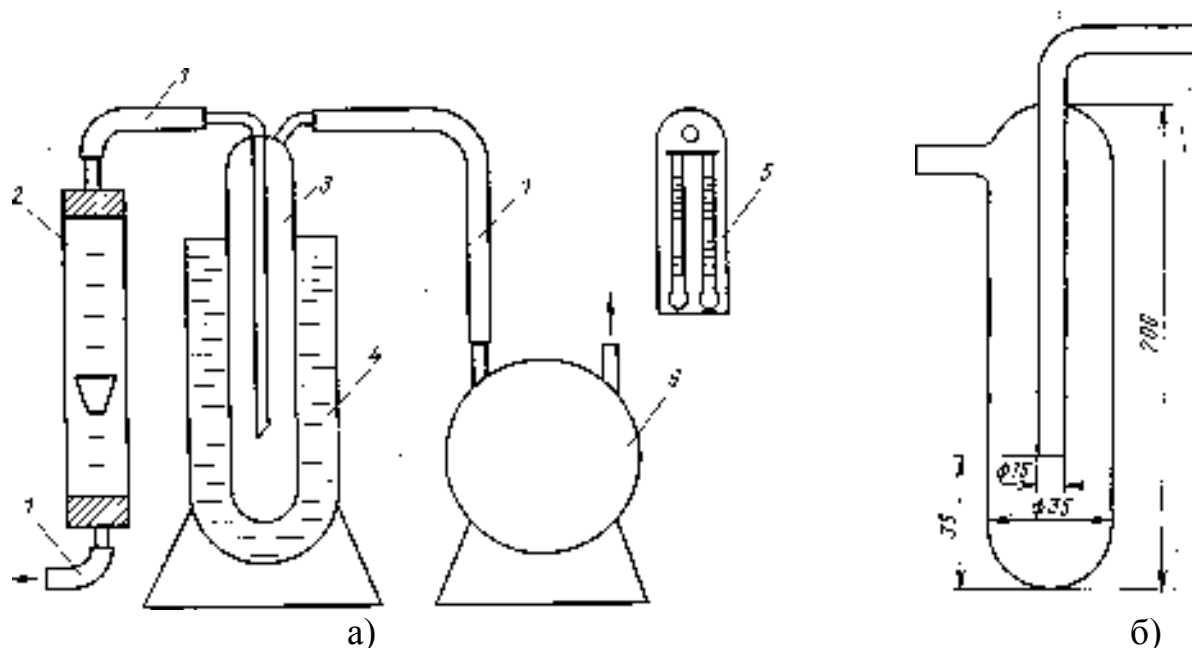


Рис. 5.3а. Схема установки для отбора проб конденсата воздуха: 1 – резиновые шланги; 2 – ротаметр; 3 – вымораживающая стеклянная ловушка; 4 – сосуд Дьюара стеклянный объемом 0,5 л охлаждающей смесью; 5 – психрометр Астмана; 6 – воздуходувка

Рис. 5.3б. Стеклянная вымораживающая ловушка

Для охлаждения ловушки можно использовать практически любую доступную охлаждающую смесь. При наличии выбора для уменьшения проскока и времени отбора пробы желательно брать смесь с более низкой температурой. Широко используемый в технике для охлаждения жидкий азот обладает тем недостатком, что при использовании его происходит вымораживание из атмосферного воздуха углекислого газа, в результате чего ловушка забивается твердой углекислотой и не пропускает воздух. Поэтому при использовании жидкого азота ловушку следует охлаждать в потоке образующегося из него газа, температура которого значительно выше. Лучше для вымораживания подходят охлаждающие смеси, приготовленные на основе твердой углекислоты (сухой лед).

Для отбора проб без вымораживающей ловушки необходимы сосуд Дьюара с охлаждаемой смесью на основе углекислоты или с жидким азотом; пластины из меди, латуни, алюминия или нержавеющей стали длиной 300—400 мм, шириной 10—15 мм и толщиной 0,5—2,0 мм; прибор для определения абсолютной влажности воздуха.

В процессе отбора пробы периодически 1—2 раза в час контролируют влажность воздуха. После окончания отбора пробы выключают воздуходувку, ловушку, отсоединяют от установки и размораживают. Полученную воду переливают в пробирку, закрывают резиновой пробкой и отправляют на измерение.

При отборе проб вторым способом металлическую пластину протирают спиртом и помещают в сосуд Дьюара с охлаждающей смесью. После намерзания заметного количества снега на открытом конце пластины (10—20 мин) отбор пробы прекращают, пластину извлекают из сосуда Дьюара и помещают (обрат-

ным концом) в стеклянную пробирку. После стаивания снега пробирку закрывают резиновой пробкой и отправляют на измерение. В процессе отбора проб измеряют абсолютную влажность воздуха. Продолжительность отбора пробы этим способом не должна превышать 10—20 мин, так как в процессе отбора скорость вымораживания уменьшается, что может привести к дополнительной погрешности при измерении изменяющихся во времени концентраций.

Метод барботирования. Этот метод основан на прокачке контролируемого воздуха через поглотительный прибор-барботер с последующим измерением активности НТО, поглощенной в барботере. При прокачке контролируемого воздуха НТО будет задерживаться дистиллированной водой в барботере, а выходящий из него воздух будет насыщен парами воды барботера, содержащими растворенную в них НТО.

Дифференциальное уравнение для активности НТО в барботере ($A_{НТО}$) может быть записано в виде

$$\frac{dA}{dt} = A_1 - A_2 \quad (5.17)$$

где A_1 – активность НТО, поглощаемая барботером из прокачиваемого воздуха; A_2 – активность НТО, уносимая из барботера с парами воды.

При полном улавливании НТО в барботере и 100%-ном насыщении выходящего из него воздуха A_1 и A_2 определяют следующими соотношениями:

$$A_1 = A_V^{НТО} \upsilon; \quad (5.18)$$

$$A_2 = \frac{A(t)}{m_t} F \upsilon = \frac{A(t) F \upsilon}{m_0 - F W_{np} (1 - f) t} \quad (5.19)$$

где υ , – скорость прокачки воздуха; m_0 и m_t – количество воды в барботере в начальный момент и после прокачки в течение времени t соответственно; F – удельное содержание воды в воздухе, **выходящем** из барботера; f – относительная влажность прокачиваемого воздуха. Введя обозначение $F \upsilon / m_0 = \lambda$, подставив значения A_1 и A_2 в уравнение (5.17) и решая его при начальных условиях $t = 0$ $A = 0$ и относительной влажности f , равной $0 < f < 1$, получим:

$$A(t) = \frac{A_V^{НТО} \upsilon}{\lambda f} [1 - (1 - f) \lambda t] \left\{ 1 - [1 - (1 - f) \lambda t]^{1-f} \right\} \quad (5.20)$$

Из данного соотношения может быть найдено значение $A_V^{НТО}$ по измеренной активности трития в барботере.

Для определения концентрации НТО в воздухе необходимы следующие аппаратура и материалы: 1) установка для отбора проб НТО (барботер); 2) стеклянная мерная посуда: мензурка, цилиндр на 50—100 мл – 1 шт.; 3) стеклянные медицинские пробирки; 4) набор химреактивов для дезактивации стеклянной посуды; 5) дистиллированная вода.

Принципиальная схема установки для отбора проб изображена на рис. 5.4. Основным элементом установки является барботер 1. Общий вид рекомендуемого

барботера показан на рис. 5.5. Для нормальной работы в данный барботер заливают 40–50 мл дистиллированной воды. Максимальные скорость прокачки и объем прокачанного воздуха равны 5 л/мин и 300 л соответственно. При соблюдении этих режимов работы проскок окиси трития через барботер при температуре окружающего воздуха $+20\pm 5^\circ\text{C}$ и относительной влажности $f = 0,5\text{--}1,0$ не превышает 10%, т. е. $p > 0,90$. При уменьшении количества прокачанного воздуха до 200 л p увеличивается до 0,95. Поэтому на практике в большинстве случаев при вычислении концентрации НТО в воздухе поправку на полное поглощение НТО барботером можно не вводить.

При отклонении от указанных выше режимов прокачки воздуха или использовании барботера иной конструкции необходимо экспериментально определять эффективность улавливания НТО барботером.

Перед отбором пробы в чистом помещении барботер заполняют 50 мл дистиллированной воды и для предотвращения загрязнения ее окисью трития входное и выходное отверстия барботера закрывают резиновыми пробками. В таком состоянии барботер транспортируют к месту отбора пробы, где после извлечения резиновых пробок его подсоединяют к установке для отбора проб воздуха. Затем включают воздуходушку и с помощью регуляторов по ротаметру устанавливают необходимую скорость прокачки воздуха

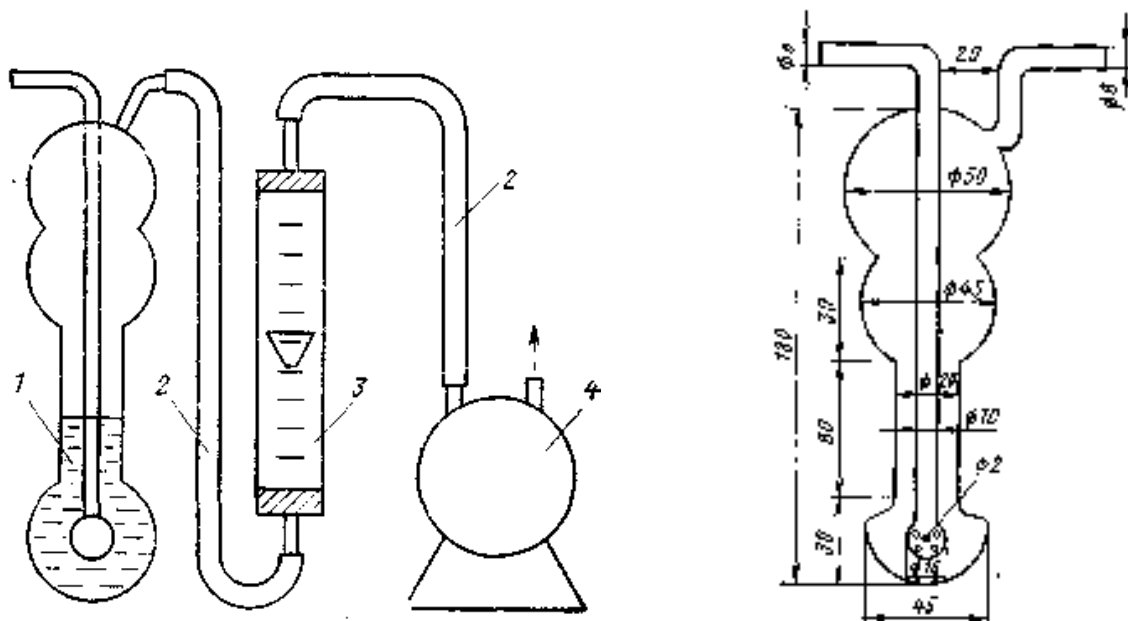


Рис. 5.4. Принципиальная схема установки для отбора НТО методом барботирования: 1 – поглотительный прибор-барботер; 2 – резиновые медицинские (вакуумные) шланги; 3 – ротаметр; 4 – воздуходушка (микрокомпрессор)

Рис. 5.5. Общий вид поглотительного прибора-барботера

В процессе отбора пробы периодически контролируют скорость прокачки воздуха через барботер. После окончания отбора барботер отсоединяют от установки, отверстия его закрывают резиновыми пробками. В чистом помещении из

барботера в медицинскую стеклянную пробирку отбирают 3–5 мл воды. Пробирку закрывают резиновой пробкой и отправляют на измерение. Оставшуюся воду выливают из барботера и его дезактивируют.

Измерения объемной активности окиси трития в водных пробах методом жидкого сцинтиллятора. Настоящая методика предназначена для измерения объемной активности окиси трития НТО в различных водных пробах с помощью сцинтилляционных радиометров с жидким сцинтиллятором, в котором растворяется исследуемая водная проба. Методика может быть использована при определении содержания НТО в организме персонала, объемной активности НТО в воздухе рабочих помещений и в других водных пробах после их соответствующей подготовки и очистки.

Сложность измерения активности трития обусловлена низкой энергией испускаемого им β -излучения. Средний пробег β -частиц трития, соответствующий максимальной энергии 18,6 кэВ, в веществе с плотностью 1 г/см³ составляет 6 мкм. Поэтому при регистрации трития требуется непосредственный контакт, исключающий применение каких-либо пленок между измеряемой пробой и детектором. Сравнительно просто непосредственный контакт может быть достигнут путем растворения пробы в жидком сцинтилляторе. При этом практически вся энергия β -излучения трития будет расходоваться на ионизацию и возбуждение молекул компонентов сцинтиллятора. Испускаемые ими при переходе из возбужденного в основное состояние световые вспышки, количество которых пропорционально числу β -частиц, поглощенных в сцинтилляторе, могут быть зарегистрированы при помощи ФЭУ. Введение β -излучателя в состав жидкого сцинтиллятора обеспечивает геометрию счета 4 π , что увеличивает чувствительность метода.

На основании изложенного принцип метода измерения объемной активности НТО в водных пробах основывается на введении исследуемой пробы в кювету с жидким сцинтиллятором и сравнении скорости счета от нее со скоростью счета от пробы со стандартной тритиевой водой (стандартная проба готовится аналогично исследуемой).

Принимая во внимание, что скорость счета пропорциональна активности образца $A = A_m V$, где A_m — удельная активность трития в пробе объемом V , концентрацию НТО в пробе A_{mn} можно определить по соотношению:

$$A_{mn} = A_{mc} \frac{V_c (I_n - I_\phi)}{V_n (I_c - I_\phi)} \quad (5.21)$$

где A_{mc} — удельная активность трития в стандартной воде; V_c , V_n — объем стандартной и исследуемой воды, введенной в кюветы; I_c , I_n , I_ϕ — скорость счета от стандартной, исследуемой и фоновой проб.

Фоновую пробу готовят аналогично исследуемой, но вместо пробы, содержащей тритий, вводят дистиллированную воду. Определив скорость счета от исследуемой, стандартной и фоновой проб, можно вычислить удельную актив-

ность НТО в исследуемой пробе. Чувствительность метода определяется конструкцией и электронной схемой радиометра, составом жидкого сцинтиллятора и оптимальным соотношением объема сцинтиллятора и пробы, которую можно растворить в сцинтилляторе.

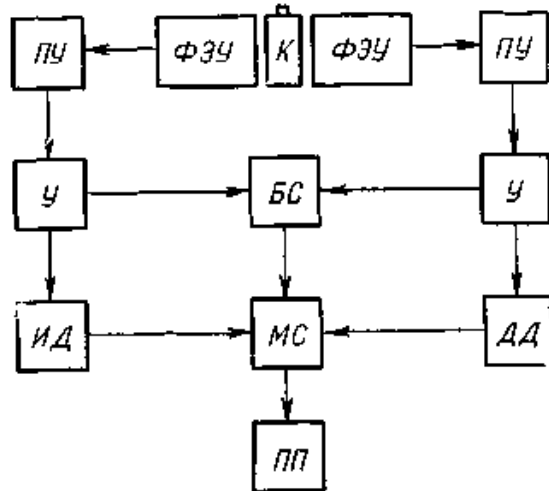


Рис. 5.6. Структурная схема жидкостного сцинтилляционного радиометра:

К — кювета; ФЭУ — фотоэлектронный умножитель; ПУ — предусилитель; У — усилитель; БС — схема совпадений; ДД и ИД — дифференциальный и интегральный дискриминаторы; МС — схема тройных совпадений; ПП — пересчетный прибор

Схема работает следующим образом. Сцинтилляции, вызываемые р-излучением трития в кювете К с жидким сцинтиллятором и растворенной в нем пробой, одновременно просматриваются двумя ФЭУ и вызывают полезные импульсы на их выходе. Фоновые импульсы обусловлены несколькими факторами: сцинтилляциями за счет радиоактивного загрязнения материалов, окружающих кювету, материала самой кюветы, реактивов, излучением ^{40}K в колбах ФЭУ, сцинтилляциями от проникающего космического излучения; импульсами, обусловленными оптической связью анодов и фотокатодов ФЭУ; термошумами ФЭУ. Амплитуда полезных импульсов сравнима с амплитудой шумовых, а амплитуда импульсов за счет остальных факторов существенно выше амплитуды шумовых и полезных импульсов. Очевидно, что кроме импульсов, обусловленных термошумами, остальные импульсы на выходах ФЭУ будут скоррелированы по времени.

Далее импульсы с выходов ФЭУ поступают на предусилители ПУ, усиливаются усилителями У и подаются на схему двойных быстрых совпадений БС с малым разрешающим временем (временной отбор). Со второго выхода усилителей импульсы подаются на схемы интегрального ИД и дифференциального ДД дискриминаторов (амплитудный отбор). С выходов БС, ИД и ДД импульсы подаются на схему тройных медленных совпадений МС, выход которой подсоединяется к пересчетному прибору ПП. Таким образом, схема временного отбора позволяет резко снизить число фоновых импульсов, обусловленных термо-

шумами ФЭУ, а схема амплитудного отбора уменьшает фон установки, обусловленный остальными факторами.

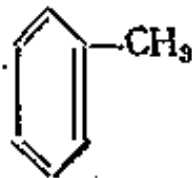
Типы жидких сцинтилляторов. В счетчиках этого типа используется эффект возбуждения атомов или молекул вещества при прохождении через него β -частиц трития. В настоящее время известно значительное число химических соединений, называемых сцинтилляторами, взаимодействие с которыми заряженных частиц или квантов реализуется в виде световых импульсов – сцинтилляций.

В состав жидкого сцинтиллятора обычно входят три основных компонента:

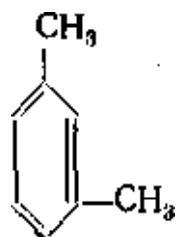
- **растворитель,**
- **сцинтиллирующая добавка**
- **сместитель спектра.**

Растворитель выполняет не только функцию растворения остальных компонентов и измеряемого образца, но и осуществляет процесс передачи энергии. Поскольку концентрация растворителя много больше сцинтиллирующей добавки, первоначальное возбуждение передается от молекулы к молекуле растворителя, пока не происходит возбуждение сцинтиллирующей добавки, энергия возбуждения которой несколько ниже, чем у растворителя. В качестве растворителей обычно применяются следующие.

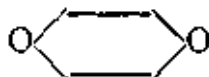
Толуол сцинтилляционный, C_7H_8 , мол. в. 92,1, оптическая прозрачность слоя 0,5 м по сравнению с HgO не ниже 75%.



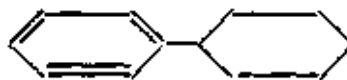
p-ксилол сцинтилляционный, C_8H_{10} , мол. в. 106,2, оптическая прозрачность слоя 0,5 м по сравнению с H_2O не ниже 60%.



Диоксан, $C_{14}H_{18}O_2$, мол. в. 226,3; температура плавления $+11,8^\circ C$.

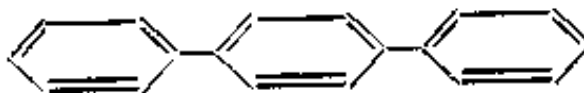


Фенилциклогексан, $C_{12}H_{16}$, мол. в. 144,3, оптическая прозрачность слоя 0,5 м по сравнению с H_2O не ниже 60%. по сравнению с HgO не ниже 95%.

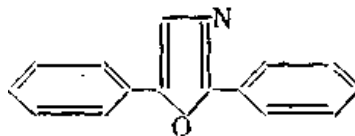


В качестве сцинтиллирующих добавок, световое излучение которых непосредственно регистрируется при измерении, обычно используются:

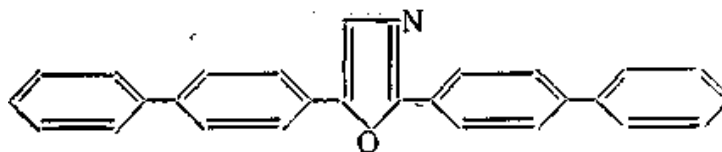
n-терфенил, $C_{18}H_{14}$, мол. в. 230,3; максимум люминесценции $\lambda = 3440 \text{ \AA}$



2,5-дифенилоксазол (ППО), $C_{15}H_{11}NO$, мол. в. 221,3; максимум люминесценции $\lambda_1 = 3650$ и $\lambda_2 = 3810 \text{ \AA}$



2-фенил-5-(4-бифенилил)-оксазол (БПО), $C_{21}H_{15}NO$, мол. в. 296; максимум люминесценции $\lambda = 4120 \text{ \AA}$.



Поскольку спектр светового излучения сцинтиллирующей добавки не полностью соответствует спектральной чувствительности наиболее часто используемых фотокатодов с сурьмяноцезиевым покрытием, то в состав сцинтиллятора вводятся сместители спектра. В качестве последних обычно применяют следующие.

1,4-ди[2-(5-фенилоксазолил)]-бензол (ПОПОП) $C_{24}H_{16}N_2O_2$, мол. в. 364,5; максимумы люминесценции $\lambda_1 = 4220$ и $\lambda_2 = 4320 \text{ \AA}$.

2,5-ди-(4-бифенилил)-оксазол (ББО), $C_{27}H_{19}NO$, мол. в. 373,5; максимумы люминесценции $\lambda_1 = 4100$ и $\lambda_2 = 4280 \text{ \AA}$.

Эффективность жидких сцинтилляторов снижается за счет «отравления» кислородом воздуха, однако она полностью восстанавливается после пропускания аргона. Введение примесей, содержащих серу и галогены, также нежелательно, поэтому перед измерением проба воды должна быть тщательно очищена от всех посторонних примесей, включая радиоизотопы различного происхождения.

Как мы отмечали, типовой жидкий сцинтиллятор состоит из растворителя, активатора и сместителя спектра. Концентрация двух последних мала (единицы и доли грамма на литр растворителя). Поэтому β -излучение трития взаимодействует в основном с молекулами растворителя и возбуждает их. Возбуждение в растворителе передается от молекулы к молекуле до тех пор, пока не локализуется на молекуле активатора. При переходе молекулы активатора в основное состояние энергия возбуждения частично может выделиться в виде светового кванта. Если оптический спектр сцинтилляций не совпадает с областью максимальной спектральной чувствительности примененного ФЭУ, в сцинтиллятор

вводят сместитель спектра. Сместителю спектра передается энергия возбуждения от активатора, а затем отдается в виде светового кванта другой более длинной волны, близкой к области максимальной чувствительности ФЭУ.

Введение воды в рабочее тело счетчика, как правило, ухудшает его эффективность прежде всего за счет снижения растворимости сцинтиллирующих добавок и сместителей спектра. Количество вводимой воды ограничено также ее низкой растворимостью во многих высокоэффективных растворителях. Так, например, только небольшое количество воды можно добавить к толуолу при наличии в нем низших спиртов. В этом случае в сцинтиллятор вводят промежуточный (вторичный) растворитель, который по сравнению с исходным более эффективно передает активатору первоначальную поглощенную энергию.

Использование диоксана в качестве растворителя позволяет вводить в значительных количествах воду (до 20—24%), но при этом снижается интенсивность отдельной световой вспышки на 70% по сравнению с первоначальной. Однако добавление нафталина (100 г/л) к 20%-ному раствору воды в диоксане увеличивает эффективность люминесценции на 85%. Жидкие сцинтилляторы на основе диоксана являются наиболее пригодными для водных проб, но их основной недостаток заключается в относительно высокой температуре замерзания.

Эффективность регистрации жидким сцинтиллятором в значительной мере зависит от чистоты реактивов. Поэтому для приготовления сцинтиллятора необходимо применять реактивы с марками ч. д. а. и «сцинтилляционный».

Для приготовления стандартных проб при градуировке радиометра используют стандартные образцы тритиевой воды (СОТВ) и стандартные образцы растворов тритиевой воды в жидком сцинтилляторе (СОРТВ), поставляемые Объединением «Изотоп». Содержание тритиевой воды в СОРТВ не превышает 5 %. Стандартные образцы характеризуются точным значением удельной (5 и 3% в 95%-ном доверительном интервале) и суммарной активности, высокой степенью радиационной чистоты и тщательностью изготовления. Номинальная масса фасовки 10 г.

Выбор оптимального объема сцинтиллятора и пробы. При введении жидкостного радиометра в эксплуатацию проверяют соответствие параметров радиометра паспортным данным. Если условия измерения отличаются от паспортных (например, применяют сцинтиллятор другой марки, пробу иного вида или измененный объем пробы, вводимой в кювету, не тот тип измерительной кюветы и пр.), может потребоваться ряд дополнительных исследований. К ним можно отнести:

- определение оптимального состава сцинтиллятора;
- определение оптимального уровня заполнения кюветы;
- определение оптимального объема пробы, вводимой в кювету для достижения максимальной чувствительности радиометра;
- определение степени гашения сцинтилляций в зависимости от вида и объема пробы;
- определение пределов линейности счета;

- определение необходимого времени выдержки после растворения пробы в сцинтилляторе в случае появления хемилюминесценции или
- определение объема вводимой в кювету пробы, при котором хемилюминесценцию можно не учитывать;
- определение влияния засвечивания ультрафиолетовым излучением кювет с пробами.

Ниже приводится методика проведения части этих исследований.

Для выбора **оптимального объема сцинтиллятора** несколько кювет заполняют сцинтиллятором и добавляют стандартный образец тритиевой воды (СОТВ) и дистиллированную воду таким образом, чтобы уровень заполнения кювет был разным, но *абсолютная активность трития и процентное соотношение сцинтиллятора и введенной воды во всех кюветах были одинаковыми*. Определяя эффективность регистрации для разных кювет, выбирают оптимальный уровень их заполнения.

Так как вода — это гаситель сцинтилляций, то, казалось бы, нужно стремиться к наименьшему содержанию воды в сцинтилляторе, чтобы получить наибольшую эффективность регистрации. Однако на практике это не всегда справедливо, так как максимальное число зарегистрированных импульсов в большей степени зависит от объема пробы, которую можно ввести в кювету. Поэтому *при малой концентрации трития в воде и достаточном количестве ее для получения большого числа импульсов (т. е. большей чувствительности радиометра) для измерения целесообразно брать больший оптимальный объем воды*, несмотря на некоторое снижение эффективности регистрации.

Для определения этого **оптимального объема** ряд кювет заполняют сцинтиллятором и добавляют СОТВ и дистиллированную воду таким образом, чтобы *уровень заполнения кюветы и абсолютная активность трития во всех кюветах были одинаковыми, а процентное соотношение сцинтиллятора и введенной воды было разное*.

Аналогично готовят **фоновые пробы**: *объем дистиллированной воды в них должен быть равен суммарному объему дистиллированной воды и СОТВ в исследуемых пробах*. Затем измеряют активные и фоновые пробы. Те активные пробы, у которых произведение суммарного объема СОТВ и дистиллированной воды на скорость счета (за вычетом фона) наибольшее, будут иметь оптимальный объем введенной пробы воды.

Один из **методов определения наличия и степени гашения** пробой сцинтилляций — *метод внутреннего стандарта*. Для этого сначала измеряют фоновую и исследуемую пробу. Затем в обе кюветы вводят СОТВ (не более 0,1 объема пробы, чтобы не учитывать дополнительного гашения от введенного СОТВ) и повторно измеряют скорость счета от кювет. Наблюдаемое увеличение скорости счета будет обусловлено добавлением СОТВ, на который гашение воздействует в такой же степени, как и на пробу. По соотношению скоростей счета до и после введения СОТВ определяется коэффициент поправки на гашение.

Порядок проведения измерений и обработка результатов. Радиометр градуируют при помощи стандартных образцов тритиевой воды (СОТВ), представляющих собой раствор окиси трития в дистиллированной воде. Поэтому для соблюдения одинаковых условий измерения исследуемую пробу необходимо вводить в сцинтиллятор только в виде дистиллята, т. е. провести перегонку (дистилляцию) пробы перед измерением. Перегонка может не потребоваться, если гашением сцинтилляций по сравнению с дистиллированной водой можно пренебречь. Так, пробы водопроводной воды, выдыхаемого конденсата не требуют предварительной подготовки. Пробы контроля внешней среды (вода открытых водоемов, снеговая и дождевая вода, вода из систем хозяйственно-бытового снабжения) требуют только освобождения от механических примесей фильтрованием через бумажные фильтры. Мочу можно подвергать очистке и обесцвечиванию, пропускать ее через активированный уголь. Если перегонка пробы невозможна или нежелательна, то необходимо предварительно определить степень гашения каждым видом проб. При концентрации трития, выходящей за верхний предел измерения радиометра, пробы подвергают предварительному разбавлению дистиллированной водой.

Перед измерением в кюветы, установленные на специальном штативе или подставке, с помощью специального сифона заливают жидкий сцинтиллятор до 0,5—0,7 их объема. Затем микропипеткой отбирают необходимый объем исследуемой пробы и вводят в кювету. Кювету заполняют сцинтиллятором до полного объема, закрывают пробкой и встряхивают несколько раз до полного растворения и перемешивания пробы со сцинтиллятором. Аналогично готовят стандартные и фоновые пробы, только вместо исследуемой пробы вводят СОТВ или дистиллированную воду такого же объема, что и исследуемая проба, чтобы гашение во всех пробах было одинаковым. Исследуемую, стандартную и фоновую пробы желательно готовить из одного и того же объема жидкого сцинтиллятора. Особенно это относится к фоновой и малоактивной исследуемым пробам, так как сцинтиллятор из разных упаковок даже одной партии может давать различный фон (например, из-за неодинакового загрязнения окисью трития из воздуха при хранении сцинтиллятора и его составляющих). Активность СОТВ, вводимой в кювету, должна находиться в пределах линейности диапазона, на котором измеряют исследуемую пробу.

Удельную активность трития в исследуемой пробе A_{mn} определяют относительным методом после последовательного измерения скорости счета от фоновой I_{ϕ} , стандартной I_c и исследуемой I_n проб по формуле

$$A_{mn} = A_{m0} \frac{I_n - I_{\phi}}{I_c - I_{\phi}} \cdot \frac{V_c}{V_n} \quad (5.22)$$

где A_{m0} — концентрация трития в СОТВ, а V_c и V_n — объемы введенных в кюветы СОТВ и пробы.

Относительную среднюю квадратическую погрешность измерения концентрации трития в пробе ε_n определяют по формуле:

$$\varepsilon_n = \pm \sqrt{\varepsilon_1^2 + \varepsilon_2^2 + \varepsilon_3^2 + \varepsilon_4^2} \quad (5.23)$$

где $\varepsilon_1, \varepsilon_2$ — относительные средние квадратические погрешности измерения скорости счета исследуемой и стандартной проб соответственно; ε_3 — относительная средняя квадратическая погрешность отбора необходимого объема исследуемой пробы и СОТВ; ε_4 — относительная средняя квадратическая погрешность определения концентрации трития в СОТВ.

Обычно нетрудно обеспечить малое значение ε_2 , так как активность трития в стандартной пробе может быть достаточно высокой. СОТВ готовят с высокой степенью точности, поэтому погрешность ε_4 также невелика (3–5%). Значение ε_3 определяется классом мерной посуды и составляет 0,5–2%. Таким образом, *погрешность измерения малых концентраций трития определяется в основном значением величины ε_1 , которое находят по формуле:*

$$\varepsilon_1 = \frac{\sqrt{\frac{I_n}{t_n} + \frac{I_\phi}{t_\phi}}}{I_n - I_\phi} \quad (5.24)$$

где t_n и t_ϕ — время измерения исследуемой и фоновой проб соответственно.

Время измерения t_n и t_ϕ для достижения заданного значения ε_1 находят по формулам

$$t_n = \frac{I_n + \sqrt{I_n I_\phi}}{\varepsilon_1^2 (I_n - I_\phi)^2} \quad (5.25)$$

$$t_\phi = \frac{I_\phi + \sqrt{I_n I_\phi}}{\varepsilon_1^2 (I_n - I_\phi)^2}$$

Таким образом, число импульсов, которое необходимо набрать при измерении фоновой и исследуемой пробы (т. е. N_c и N_ϕ), чтобы обеспечить заданную относительную погрешность измерений, зависит только от соотношения скоростей счета n_c и n_ϕ и заданной погрешности измерения. В табл. 5.6 приведены рассчитанные N_c и N_ϕ для разных значений I_c/I_ϕ и ε_1 .

Таблица 5.6

Число импульсов, которое необходимо набрать при измерении, для достижения заданной относительной погрешности

| n_{Π}/n_{Φ} | $\varepsilon_1 = 5\%$ | | $\varepsilon_1 = 10\%$ | | $\varepsilon_1 = 15\%$ | | $\varepsilon_1 = 20\%$ | | $\varepsilon_1 = 25\%$ | | $\varepsilon_1 = 30\%$ | |
|--------------------|-----------------------|-----------|------------------------|-----------|------------------------|-----------|------------------------|-----------|------------------------|-----------|------------------------|-----------|
| | N_{Φ} | N_{Π} | N_{Φ} | N_{Π} | N_{Φ} | N_{Π} | N_{Φ} | N_{Π} | N_{Φ} | N_{Π} | N_{Φ} | N_{Π} |
| 1,3 | 9510 | 14090 | 2380 | 3520 | 1060 | 1565 | 595 | 880 | 380 | 563 | 264 | 391 |
| 1,4 | 5460 | 9050 | 1360 | 2269 | 606 | 1000 | 340 | 565 | 218 | 360 | 150 | 250 |
| 1,5 | 3569 | 6540 | 890 | 1630 | 395 | 730 | 220 | 410 | 140 | 260 | 100 | 180 |
| 1,6 | 2520 | 5100 | 630 | 1270 | 280 | 570 | 157 | 318 | 100 | 204 | 70 | 140 |
| 1,7 | 1880 | 4170 | 470 | 1040 | 209 | 460 | 117 | 261 | 75 | 170 | 50 | 116 |
| 1,8 | 1460 | 3540 | 366 | 884 | 160 | 390 | 90 | 220 | 60 | 140 | 40 | 98 |
| 1,9 | 1170 | 3080 | 294 | 770 | 130 | 340 | 73 | 192 | 50 | 125 | 33 | 85 |
| 2,0 | 970 | 2730 | 240 | 680 | 110 | 300 | 60 | 170 | 40 | 110 | 27 | 76 |
| 2,5 | 460 | 1810 | 115 | 450 | 50 | 200 | 30 | 110 | 18 | 73 | 13 | 50 |
| 3,0 | 270 | 1420 | 70 | 360 | 30 | 160 | 17 | 90 | 11 | 57 | 8 | 40 |
| 4,0 | 130 | 1070 | 33 | 260 | 15 | 118 | 8 | 67 | — | 43 | — | 30 |
| 5,0 | 80 | 900 | 20 | 226 | 9 | 100 | — | 56 | — | 36 | — | 25 |
| 6,0 | 55 | 810 | 14 | 203 | 6 | 90 | — | 50 | — | 32 | — | 23 |
| 7,0 | 40 | 750 | 10 | 187 | — | 80 | — | 47 | — | 30 | — | 21 |
| 8,0 | 30 | 710 | 8 | 177 | — | 79 | — | 44 | — | 28 | — | 20 |
| 9,0 | 25 | 675 | 6 | 170 | — | 75 | — | 42 | — | 27 | — | 19 |
| 10,0 | 20 | 650 | — | 160 | — | 70 | — | 39 | — | 26 | — | 18 |
| 15,0 | 10 | 580 | — | 140 | — | 60 | — | 36 | — | 23 | — | 16 |
| 20,0 | — | 540 | — | 135 | — | 58 | — | 34 | — | 22 | — | 15 |

При определении коэффициента гашения в пробах методом внутреннего стандарта готовят и измеряют фоновую и исследуемую пробы. Затем в кюветы добавляют, как указывалось выше, небольшой объем СОТВ (не более 0,1 объема пробы) и проводят повторные измерения. По результатам измерений определяют коэффициент гашения L по формуле:

$$L = \frac{I'_c - I_{\Phi}}{I'_{c+n} - I_{\Phi}} \quad (5.26)$$

где I_{c+n} и I'_c — скорость счета от исследуемой и фоновой проб с добавлением СОТВ.

Метод внутреннего стандарта можно применять при коэффициенте гашения $L \leq 3$. Если при измерении получено $L > 3$, то пробу следует подвергнуть дополнительной обработке (перегонке, фильтрованию и т. п.) и повторить измерение. При определении содержания трития в малоактивных пробах необходимо учитывать возможность загрязнения окисью трития как самих проб, так и жидкого сцинтиллятора или его составляющих через воздушную среду. Поэтому измерять и хранить малоактивные пробы или сцинтилляторы необходимо в помещениях, в воздухе которых отсутствует тритий. Особую опасность в этом отношении представляет окись трития. Необходимо также особо тщательно закупоривать сосуды, в которых хранятся пробы и сцинтиллятор. Не следует также совместно хранить или транспортировать малоактивные пробы и сцинтилляторы с высокоактивными пробами. Тара, контейнеры, в которых перево-

зятся пробы, шкафы, в которых они хранятся, также могут стать источниками выделения трития и загрязнения проб, так как многие материалы (например, фанера) хорошо *сорбируют и выделяют окись трития*. Активированный уголь, применяемый для очистки проб, может также стать источником загрязнений. Поэтому при хранении активированного угля, например в полиэтиленовых мешочках, следует учитывать, что *окись трития хорошо диффундирует через полиэтилен*.

5.4. Измерение объемной активности радона в воздухе

Радон - самый тяжелый из инертных газов. Температура его сжижения -62°C . В нормальных условиях плотность радона в 7,5 раз выше плотности воздуха. Радон-222 образуется в природе как продукт радиоактивного распада в радиоактивной цепочке, основоположником которой является ^{238}U , ^{220}Rn - в ряду распада ^{232}Th .

С точки зрения радиационной безопасности основной интерес представляют ^{222}Rn (радон) и ^{220}Rn (торон).

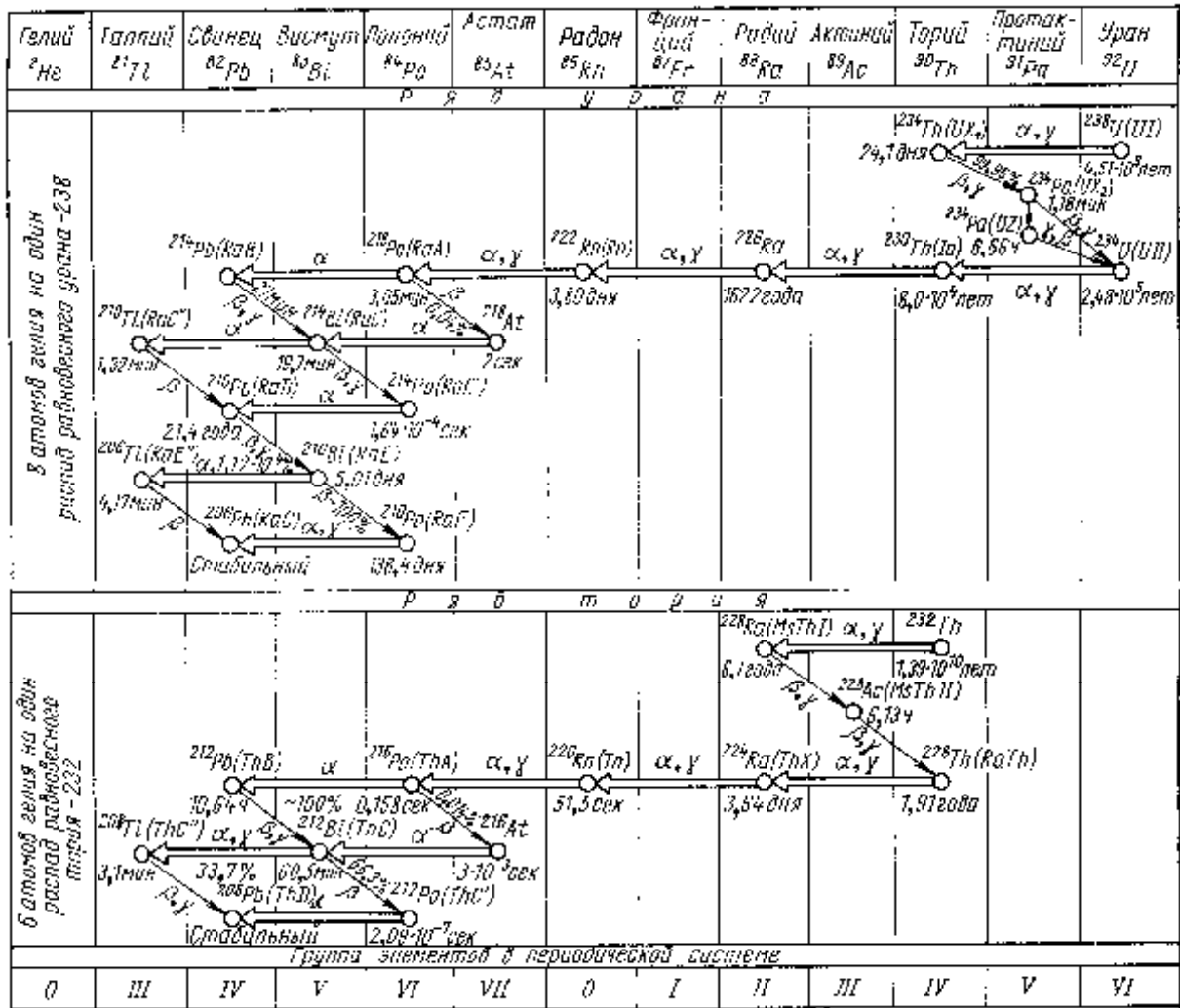


Рис. 5.7. Ряды распада ^{238}U и ^{232}Th

При распаде радона и торона образуются цепочки короткоживущих α - и β -активных радионуклидов (табл.5.7). Вследствие большого периода полураспада RaD (^{210}Pb) его объемная активность в воздухе никогда не достигает значимых величин и рассмотрение цепочки распада ^{222}Rn ограничивают радионуклидами RaC-RaC' (^{214}Bi - ^{214}Po).

На практике для описания интегральной объемной активности дочерних продуктов распада радона в воздухе часто используется понятие "скрытая энергия". **Скрытая энергия - это суммарная энергия альфа-излучения, которая выделяется при распаде всех короткоживущих ДПР (для ^{222}Rn вплоть до RaC') в единице объема воздуха.**

В дальнейшем мы часто будем использовать термины "эквивалентная равновесная объемная активность" (ЭРОА) радона и "коэффициент равновесия".

Эквивалентной равновесной объемной активностью радона для неравновесной смеси короткоживущих дочерних продуктов распада в воздухе называется такая объемная активность радона в полном равновесии с дочерними продуктами распада, которая имеет такую же величину скрытой энергии, как и данная неравновесная смесь.

Таблица 5.7

Радиационные свойства изотопов Rn и их основных дочерних продуктов распада

| Радионуклид | Период полу-распада | Тип распада | Энергия частиц, МэВ |
|---------------------------|-------------------------|---------------------------------------|--|
| ^{222}Rn (Rn) | 3,825 сут | α | 5,4897 |
| ^{218}Po (RaA) | 3,05 мин | α | 6,0025 |
| ^{214}Pb (RaB) | 26,8 мин | β | 0,672 (48)* 0,729 (42,5) |
| ^{214}Bi (RaC) | 19,7 мин | β | 1,505 (17,7) 1,540 (17,9) 3,270 (17,2) |
| ^{214}Po (RaC') | $1,637 \cdot 10^{-4}$ с | α | 7,6871 |
| ^{210}Pb (RaD) | 22 года | β | 0,0165 (80,2) 0,063 (19,8) |
| ^{210}Bi (RaE) | 4,989 сут | β | 1,161 (100) |
| ^{210}Po (RaF) | 138,4 сут | α | 5,3045 |
| ^{220}Rn (Tn) | 55,6 с | α | 6,288 |
| ^{216}Po (ThA) | 0,146 с | α | 6,7785 |
| ^{212}Pb (ThB) | 10,64 ч | β | 0,334 (85,1) 0,573 (9,9) |
| ^{212}Bi (ThC) | 60,55 мин | α (35,93%) β (64,07%) | 6,050 (25,2) 6,090 (9,6) 1,519 (8,0) 2,246 (48,4) |
| ^{212}Po (ThC') | $2,98 \cdot 10^{-7}$ с | α | 8,7849 |
| ^{208}Tl (ThC'') | 3,053 мин | β | 1,284 (23,2) 1,517 (22,7) 1,794 (49,3) |

* - В скобках - выход излучения (приведены данные для частиц с максимальным выходом), %.

Эквивалентная равновесная объемная активность ^{222}Rn (^{220}Rn) связана с объемными активностями ДПР следующим соотношением:

$$\begin{aligned} A_{\text{ЭРОА}}^{\text{Rn}} &= A_V^{\text{Rn}} F = 0,1046 A_V^{\text{Po}-218} + 0,5161 A_V^{\text{Pb}-214} + 0,3793 A_V^{\text{Pb}-214}, \\ A_{\text{ЭРОА}}^{\text{Tn}} &= A_V^{\text{Tn}} F = 7 \cdot 10^{-6} A_V^{\text{Po}-216} + 0,9133 A_V^{\text{Pb}-212} + 0,0867 A_V^{\text{Bi}-212} \end{aligned} \quad (5.27)$$

Коэффициент равновесия F определяется как отношение эквивалентной равновесной объемной активности радона в воздухе к реальной объемной активности радона. На практике всегда $F < 1$.

Электростатические камеры. Основной принцип регистрации радона в воздухе с помощью электростатической камеры основан на том, что около 90% дочерних продуктов распада имеют положительный заряд. Оставшиеся 10% нейтральны или отрицательно заряжены. Если образующиеся ДПР поместить в электрическое поле, то будет наблюдаться их миграция вдоль силовых линий поля и собирание на поверхности детектирующего устройства.

Электростатическая камера представляет собой полый, чаще всего полусферический или цилиндрический сосуд. Объем электростатической камеры обычно составляет от 1 до 6 л. В камеру устанавливается детектор α -излучения. Обычно это поверхностно-барьерный полупроводниковый детектор. Между стенкой камеры и детектором создается разность потенциалов в 1 – 4 кВ так, чтобы положительно заряженные дочерние продукты распада радона двигались под действием электрического поля к детектору и оседали на его поверхности.

Радон поступает в измерительную электростатическую камеру либо путем прокачки воздуха через объем камеры, либо пассивно, путем диффузии через пористый материал (поролон), которым в этом случае окружают внешний электрод. Образующиеся при распаде радона атомы ^{218}Po (RaA) на 90% имеют положительный заряд и собираются (за время их жизни) под действием электрического поля на поверхности α -детектора.

Альфа-частицы, образующиеся при распаде ^{218}Po регистрируются детектором. Использование поверхностно-барьерных полупроводниковых детекторов, работающих в спектрометрическом режиме, позволяет разделить α -частицы, образующиеся при распаде ^{218}Po и ^{214}Po . Таким образом, существенно увеличивается экспрессность работы прибора, поскольку нет необходимости ожидать полного распада осевших на поверхность детектора дочерних продуктов распада перед началом следующего измерения. Достаточно подождать около 15-25 мин, чтобы распался находящийся на детекторе ^{218}Po .

В последнее время в нашей стране созданы приборы, работающие на принципе электростатической камеры: РРА-01М-01 и РРА-01М-03, созданные Московским инженерно-физическим институтом. Прибор имеет предел чувствительности на уровне 20 Бк/м^3 и время измерения от 20 мин. Объем рабочей камеры прибора порядка 1 л и масса прибора вместе с носимой сумкой не превышает 4

кг. В настоящее время налажен его серийный выпуск (прибор имеет сертификат Госстандарта Российской Федерации).

Приборы с электростатическими камерами могут быть эффективно использованы и для определения удельной активности радона в воде. При этом электростатическая камера включается в замкнутую систему, состоящую из барботера с исследуемой пробой, осушителя, воздуходувки и собственно измерительной камеры. При барботаже пробы большая часть растворенного в воде радона переходит в газовую фазу и определяется при помощи электростатической камеры. Уровень обнаружения радона в воде при помощи электростатических камер лежит в пределах 0,1-1 Бк/л.

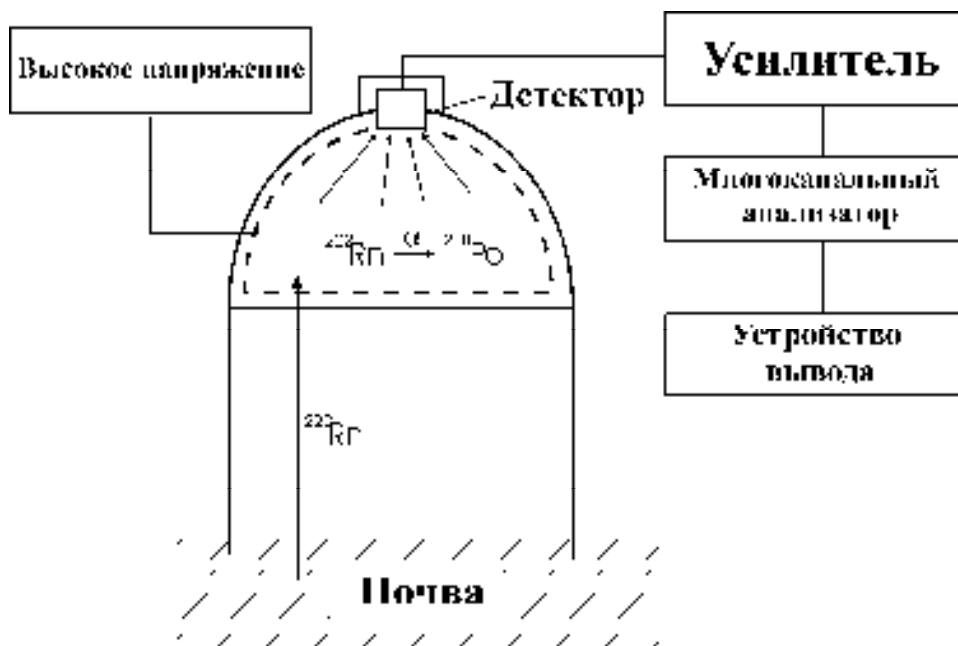


Рис 5.8. Измерение скорости эксхалляции радона из почвы при помощи прибора с электростатической камерой

Приборы с электростатической камерой специальной конструкции могут быть использованы для определения скорости эксхалляции радона из почвы (рис.5.8). В этом методе определяется временная зависимость накопления радона в известном объеме измерительной камеры после установки и герметизации измерительного устройства.

Измерение объемной активности радона путем сорбции на активированном угле

Теория адсорбции радона на активированном угле. Особенностью воздействия радона является то, что его объемная активность и объемная активность ДПР могут меняться для одного помещения на несколько порядков в зависимости от изменения кратности воздухообмена. Для того, чтобы учесть этот эф-

факт, используют интегрирующие детекторы радона, т.е. детекторы, отклик которых пропорционален средней объемной активности радона за период измерений. Один из типов интегрирующих детекторов – трековые детекторы, время экспозиции которых обычно лежит в пределах 1-3 мес.

В целях получения информации за более короткий период измерения могут быть использованы детекторы, принцип действия которых основан на способности активированного угля поглощать радон из окружающей атмосферы. Адсорбция его происходит пассивно, без использования принудительной прокачки. Далее производят определение абсолютной активности поглощенного активированным углем радона. В качестве регистрирующего метода могут быть использованы γ -спектрометрия, перевод радона из поглотительного патрона в сцинтилляционную или ионизационную камеру либо десорбция радона из активированного угля в органический растворитель с последующим приготовлением жидкого сцинтиллятора. Преимущество использования адсорбционных детекторов на базе активированного угля – их невысокая стоимость, простота изготовления и возможность получения информации об усредненной за период 1-7 сут объемной активности радона.

Рассмотрим вкратце теоретические основы определения концентрации радона при помощи адсорбции на активированном угле. Для давления газа, соответствующего парциальному давлению $p \ll 1$ атм (что всегда имеет место для Rn), его адсорбция на угле описывается законом Генри

$$v = kp, \quad (5.28)$$

где v - объем газа, поглощенного на единицу массы угля в состоянии равновесия; p - парциальное давление газа; k - коэффициент адсорбции, $\text{см}^3/\text{г}$ (или л/г).

Можно записать эквивалентное выражение для активности, поглощенной на единицу массы угля

$$\frac{A}{m} = kA_V, \quad (5.29)$$

где A - поглощенная активность; m - масса угля, г; A_V - объемная активность радона в воздухе.

Величина k обычно лежит в пределах 2-6 л/г. Для отечественных углей СКТ приводятся данные $k=6,5-12,6$ л/г. Для угля ПАУ-1 $k=17,8$ л/г.

Если $k=4$ л/г, то из выражения (5.29) следует, что в равновесии с окружающим воздухом каждый грамм угля поглотит радон, присутствующий в 4 л воздуха, т.е. будет иметь активность 4 Бк/г на 1 Бк/л воздуха.

Если активированный уголь массой m поместить в закрытый объем V с начальной объемной активностью радона A_{V0} , то в результате адсорбции эта объемная активность уменьшится до

$$A_V = A_{V0} - \frac{A}{V}. \quad (5.30)$$

При этом мы считаем, что время установления равновесия много меньше периода полураспада радона. Одновременное решение уравнений (5.29) и (5.30) дает

$$A = \frac{kmA_{V0}}{1 + km/V}. \quad (5.30)$$

Если $V \ll km$ (сосуд малого объема), то мы получаем

$$A \approx A_{V0}V, \quad (5.30)$$

т.е. уголь поглощает практически весь радон, содержащийся в объеме V . Однако, если объем $V \gg km$ (помещение около 10^5 л), то выражение принимает вид

$$A \approx kmA_{V0}. \quad (5.33)$$

Таким образом, измерение A при известном коэффициенте k позволяет определить объемную активность радона в воздухе. Использование соотношения (5.33) позволяет осуществить **инспекционные измерения** объемной активности радона. Однако, рассматривая уравнение (5.33), необходимо иметь в виду, что оно справедливо лишь при хорошем контакте всего угля с воздухом. Это может быть реализовано в случае, когда *все гранулы угля распределены в один слой на какой-либо поверхности*. При использовании тонкого слоя время установления равновесия будет мало и мы будем регистрировать "мгновенную" объемную активность R_n , а не величину, усредненную за период экспозиции. Уравнение (5.33) также справедливо при активной прокачке радоново-воздушной смеси через поглотительный патрон, содержащий активированный уголь. При этом должно соблюдаться условие $V_{np} \gg km$.

Адсорбционные детекторы радона с использованием диффузионного барьера. Эффективным способом улучшения интегрирующих характеристик детектора и увеличения реального времени накопления радона является установка диффузионного барьера между исследуемой атмосферой и активированным углем. Основная задача данного барьера – замедлить скорость поступления радона из атмосферы в слой активированного угля.

Диффузионные барьеры могут иметь различную конструкцию. Они могут быть выполнены в виде тонкой мембраны, слоя пористого материала либо в виде трубки длиной L и поперечным сечением S (рис.5.9).

При использовании диффузионного барьера имеется значительный градиент объемной активности R_n между внутренним объемом сосуда и наружной атмосферой. В этом случае активированный уголь в детекторе можно рассматривать как эквивалентный объем $V=km$. Т.е. *поступление радона через диффузионный барьер в небольшой по объему патрон с активированным углем рассматривается аналогичным диффузии радона в большую пустую емкость с эквивалентным объемом V через тонкий капилляр или диффузионную мембрану*. При этом фактически пренебрегается диффузионным характером миграции радона в объ-

еме детектора и считается, что радон в детекторе распределен равномерно. Это допущение справедливо, если время установления равновесия в объеме угля t_{eq} много меньше постоянной времени детектора τ .

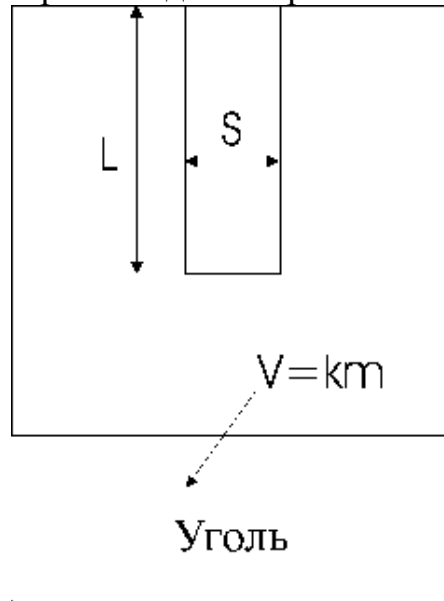


Рис.5.9. Принципиальная схема пассивного адсорбционного детектора на активированном угле с использованием диффузионного барьера

Изменение активности A , накапливаемой детектором, зависит от параметров диффузионного барьера, разности объемной активности радона снаружи A_{V0} и гипотетической объемной активности A_{Vi} внутри детектора и описывается следующим дифференциальным уравнением:

$$\frac{dA}{dt} = \frac{D_b S}{L} (A_{V0} - A_{Vi}) - \lambda A, \quad (5.34)$$

где D_b - коэффициент диффузии радона через диффузионный барьер; S - площадь барьера; L - длина диффузионного барьера. Данное уравнение можно переписать в другом виде, сделав подстановку $A = A_{Vi} V$

$$\frac{dA_{Vi}}{dt} = - \left(\frac{D_b S}{LV} + \lambda \right) A_{Vi} + \frac{D_b S}{LV} A_{V0}. \quad (5.35)$$

Решением уравнения (4.26) для начальных условий $A_{Vi}=0$ и $t=0$ является

$$\begin{aligned} A_{Vi} &= A_{V0} \frac{D_b S}{LV} \tau (1 - \exp(-t / \tau)) = \\ &= A_{V0} (1 - \lambda \tau) (1 - \exp(-t / \tau)), \end{aligned} \quad (5.36)$$

где величина τ определяется из уравнения

$$\frac{1}{\tau} = \frac{D_b S}{LV} + \lambda. \quad (5.37)$$

По сути τ - постоянная времени интегрирования детектора с диффузионным барьером. Она может быть определена экспериментально. Если в момент $t=0$,

$A_{V0}=0$ и $A_{Vi}=A_{Vi0}$, то решением уравнения (5.31) будет классическое уравнение радиоактивного распада

$$A_{Vi} = A_{Vi0} \exp\left(-\frac{t}{\tau}\right). \quad (5.38)$$

Таким образом, для экспериментального определения величины τ необходимо экспонировать детектор при высокой объемной активности радона, выдержать его примерно в течение суток в загерметизированном состоянии, чтобы радон равномерно распределился по слою активированного угля, а затем поместить детектор в атмосферу с низкой объемной активностью радона и исследовать затухание скорости счета γ -излучения от детектора.

Увеличение постоянной времени интегрирования детектора τ приводит к уменьшению его чувствительности. На рис.5.10 представлена зависимость A/A_{max} от τ и времени интегрирования.

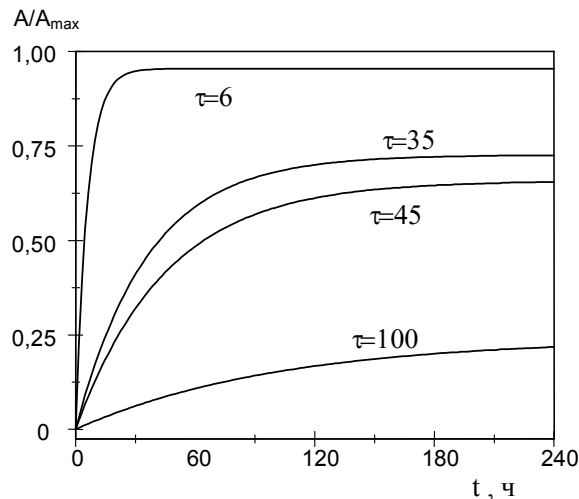


Рис.5.10. Динамика накопления активности Rn в адсорбционном детекторе с диффузионным барьером в зависимости от времени экспозиции и постоянной времени детектора τ , ч

Здесь A – активность, накопленная в детекторе, а A_{max} – активность, которая могла быть накоплена в детекторе при диффузионном барьере бесконечной эффективности ($D_b S/L = \infty$). Видно, что максимальное время экспозиции для детектора с диффузионным барьером составляет около 3τ .

Были рассчитаны отклики системы с диффузионным барьером на различные зависимости объемной активности радона от времени (общее время экспозиции 24 ч):

- A. $A_V = 24 A_{V0}$, $t=0-1$ ч; $A_V = 0$, $t=1-24$ ч;
- B. $A_V = 24 A_{V0}$, $t=12-13$ ч; $A_V = 0$, $t=1-12$ и $13-14$ ч;
- C. $A_V = 24 A_{V0}$, $t=23-24$ ч; $A_V = 0$, $t=0-23$ ч;
- D. $A_V = A_{V0}$, $t=0-24$ ч.

Приведем погрешность регистрации средней концентрации радона $A_{\nu 0}$ в зависимости от постоянной времени диффузионного барьера (относительная чувствительность для варианта экспозиции D была принята за единицу):

| τ , ч | Условия экспозиции | | | |
|------------|--------------------|-------|-------|-------|
| | A | B | C | D |
| 127 | 0,920 | 1,016 | 1,126 | 1,000 |
| 117 | 0,812 | 0,935 | 1,061 | 1,000 |
| 95 | 0,790 | 0,984 | 1,241 | 1,000 |
| 80 | 0,689 | 0,939 | 1,305 | 1,000 |

Видно, что использование детекторов с диффузионным барьером обеспечивает приемлемую для практических целей точность даже при очень резких колебаниях объемной активности радона за период измерения.

Влияние температуры и влажности на показания угольных детекторов.

Существенным недостатком угольных детекторов является зависимость их чувствительности от температуры и влажности окружающей атмосферы. Температура влияет на два физических параметра: коэффициент адсорбции k и коэффициенты диффузии радона по объему угля D и через диффузионный барьер D_b (для большинства конструкций детекторов с диффузионным барьером D_b равен коэффициенту диффузии радона в воздухе D_g).

Эффективный коэффициент диффузии радона по объему активированного угля дается выражением

$$D = \frac{\gamma \varepsilon' D_g}{\rho k}, \quad (5.39)$$

где γ - пористость активированного угля; ε' - функциональный межчастичный объем пустот; D_g - коэффициент диффузии радона в воздухе; ρ - плотность угля. Зависимость коэффициента адсорбции k от температуры хорошо описывается аррениусовской зависимостью

$$k \approx B e^{E/RT}, \quad (5.40)$$

где B - предэкспоненциальный множитель (при малом диапазоне изменения температуры – константа); E - теплота поглощения Rn активированным углем (при комнатной температуре $E=(24 \div 37) \cdot 10^3$ Дж·моль⁻¹; R - универсальная газовая постоянная 8,314 Дж·моль⁻¹·град⁻¹).

Зависимость коэффициента диффузии радона в воздухе от температуры и давления (в реальных ситуациях $P=1$ атм=const) может быть записана в виде

$$D_g \sim T^{3/2} P^{-1}. \quad (5.41)$$

Таким образом, с помощью выражений (5.35) – (5.37) можно учесть температурную зависимость чувствительности пассивных угольных детекторов при известных значениях этих параметров при какой либо температуре T_0 .

Физической модели, описывающей снижение чувствительности угольных детекторов при увеличении влажности атмосферы, на настоящий момент не разработано. Поэтому для оценки такого влияния проводят калибровку детекторов при различной влажности и регистрируют не только накопленный в детекторе радон, но и изменение массы детектора за счет поглощенной влаги. После экспонирования детектора производят его взвешивание, по изменению массы определяют поглощенное количество воды и производят соответствующую корректировку калибровочных коэффициентов.

Проведенные нами эксперименты показали, что при использовании вместо диффузионного барьера открытого типа мембраны из тонкой силиконовой резины, аналогичной применяемой в трековых детекторах, можно практически избавиться от влияния влажности на чувствительность угольных детекторов.

Использование трековых детекторов для определения объемной активности радона в воздухе

Общие характеристики трековых детекторов. В последнее время для регистрации тяжелых заряженных частиц (α -частиц, осколков деления, частиц космического происхождения и др.) широкое применение находят так называемые твердотельные трековые детекторы.

Заряженные частицы, проходя через различные материалы (в первую очередь через диэлектрики), теряют вдоль своего пути энергию и производят радиационные нарушения в веществе. В результате вдоль траектории частицы образуется область, в которой находится *вещество с измененной структурой*. Как правило, эта область обладает повышенной химической растворимостью и называется скрытым, латентным треком. Благодаря отсутствию в диэлектриках свободных электронов область латентного трека достаточно стабильна и в зависимости от состава материала, температуры и влажности среды может сохраняться без изменений от нескольких суток до нескольких лет. При воздействии на диэлектрики с латентными треками специально подобранных растворителей происходит образование на поврежденных участках пустотелых конических или цилиндрических каналов, уходящих от поверхности в глубь материала. Это и есть выявленные треки.

В качестве материала для трековых детекторов могут быть использованы различные стекла, широкий класс минералов. Однако треки в этих материалах могут быть образованы, как правило, лишь очень тяжелыми частицами (осколками деления). Для регистрации более легких ядер (в том числе и α -частиц) в последнее время разработан ряд полимерных материалов.

В целом известно более 40 пленок различного состава, способных регистрировать заряженные частицы, но в качестве детекторов широко используют лишь часть этих пленок. Ограничения в применении материалов связаны со следующими требованиями:

- высокой исходной прозрачностью для видимого света, сохраняющейся и после растворения (травления) поверхностного слоя;
- объемной однородностью состава и структуры;
- сохранением целостности и механической прочности после травления;
- отсутствием рельефа и постоянством толщины;
- выявлением треков правильной геометрической формы при условии, что размеры трека однозначно связаны с параметрами частицы;
- воспроизводимостью количества и параметров треков при одинаковых условиях травления;
- контролируемым изменением латентных треков при известных условиях хранения детекторов.

Для регистрации легких ядер и α -частиц наиболее широко применяются нитроцеллюлозные и поликарбонатные пленки (табл.5.8)

Таблица 5.8

Материалы, используемые в качестве детекторов α -частиц

| Марка | Тип соединения | Фирма-изготовитель | Страна | Примечание |
|-----------------------------|----------------------|--|-------------------------------|--|
| CR-39 | Аллилли-колькарбонат | American Acrylic & Plastics, Pershore Mouldings Ltd. | США, Англия, Венгрия, Франция | Наиболее чувствителен к образованию треков. Оптимальный материал для детекторов |
| LR-115 CA-80-15 CN-85 | Нитроцеллюлоза | Kodak-Pathe | Франция | Высокочувствительные пленки для регистрации α -частиц. Оптимальные марки LR-115 и CN-85 |
| Daicell | Нитроцеллюлоза | Dai-Nippon | Япония | Может применяться наряду с пленками Kodak |
| Lexan | Поликарбонат | General Electric | США | Могут быть использованы в качестве детекторов, но имеют меньшую чувствительность |
| Macro-foil E | Поликарбонат | Bayer A.G. | ФРГ | |

Относительно невысокая стоимость, нечувствительность трековых детекторов к сопутствующему γ - и β -излучению, способность к длительному хранению информации сделало их широко применяемыми для мониторинга радона как в подземных выработках, так и в жилых помещениях

Условия образования треков в материале трековых детекторов. Альфа-частицы, возникающие при распаде радона и его дочерних продуктов, могут создавать травимые треки непосредственно в чувствительном пластике. Однако, область энергий α -частиц, при которых это происходит, ограничена. Существует пороговая величина потерь энергии $\left(\frac{dE}{dx}\right)_{tr}$, при превышении которой может образоваться трек. Зависимость $\left(\frac{dE_{\alpha}}{dx}\right)$ от энергии α -частиц немоно-

тонна, следовательно, можно выделить некоторый диапазон энергий - $E_{min} < E_{\alpha} < E_{max}$, в пределах которого будет выполняться условие $\left(\frac{dE_{\alpha}}{dx}\right) > \left(\frac{dE}{dx}\right)_{tr}$ и будут образовываться треки.

В действительности E_{min} и E_{max} , соответствующие формированию распознаваемых треков, могут отличаться от данных значений. Обычно под E_{min} понимается энергия, при которой пробег α -частицы слишком мал для создания действительно наблюдаемого трека. Максимальная энергия E_{max} - это обычно энергия, при которой скорость травления трека становится столь малой, что за обычное время травления длина или диаметр треков недостаточно велики для их распознавания. В связи с этим данный предел будет зависеть от условий травления.

Приведем приблизительные значения E_{min} и E_{max} для нескольких часто применяемых пластиков, чувствительных к α -частицам:

| Тип пластика | E_{min} , МэВ | E_{max} , МэВ |
|---|-----------------|-----------------|
| Lexan, Macrofoil E, поликарбонаты | 0,2 | 3 |
| Нитрат целлюлозы (CA-80-15, CN-85, LR-115, Daicell) | 0,1 | 3,5-6 |
| CR-39 | 0,1 | 20 |

Видно, что при детектировании α -частиц высоких энергий для ряда пластиков требуется установка слоя тормозящего материала между источником излучения и трековым детектором в целях уменьшения энергии α -частиц до области чувствительности детектирующего материала.

Кроме того, для материалов, использующихся в качестве трековых детекторов, существует понятие критического угла θ_c . Критический угол θ_c - это минимальный угол между направлением движения заряженной частицы и поверхностью детектора, при котором еще образуется регистрируемый трек. Величина θ_c зависит от материала детектора, а также от энергии заряженной частицы.

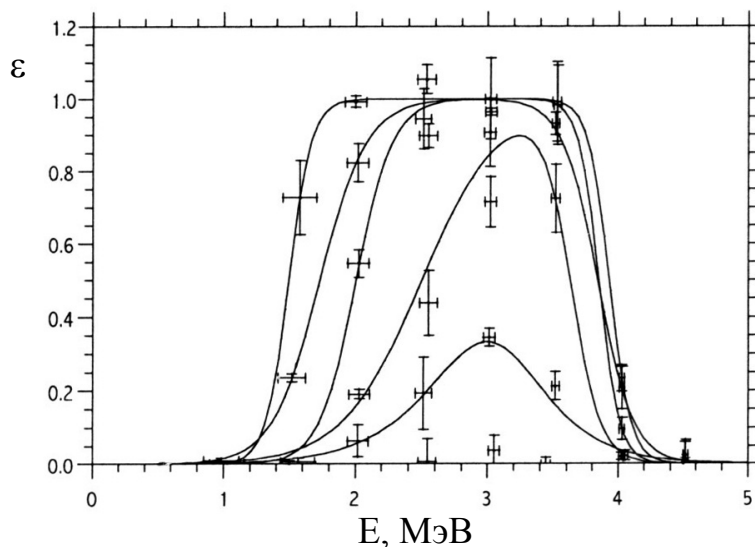


Рис. 5.11. Зависимость эффективности регистрации α -излучения материалом LR-115 от энергии для углов (от внешней кривой к внутренней): 0°, 30°, 40°, 50°, 55°, 60°

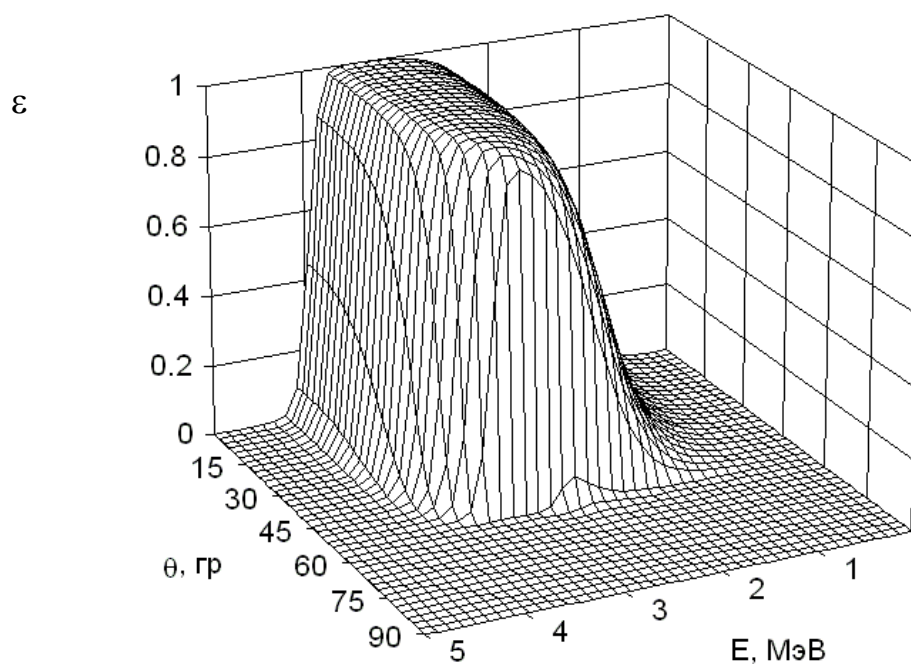


Рис. 5.12. Объемное представление функции эффективности регистрации α -излучения материалом LR-115 от энергии

Практические конструкции и принципы работы измерительных устройств с использованием трековых детекторов. Интегрирующие трековые радиометры радона ИРР-3М, разработанные в ЗАО "Радиационные и экологические исследования" г. Москва, используемые для определения объемной активности радона в воздухе жилых помещений, конструктивно состоят из цилиндрического корпуса (пробоотборная камера) с навинчивающейся крышкой, внутри которого находится пружинный держатель двух палец с трековым детектором (рис.

5.13). Резьбовой лабиринт между корпусом и крышкой выполняет следующие функции:

- не пропускает в пробоотборную камеру дисперсную фазу аэрозоля, благодаря чему ДПР регистрируются только от распада того радона, который попал в пробоотборную камеру;
- не пропускает торон и его ДПР;
- препятствует конденсации влаги на внутренних поверхностях пробоотборной камеры;
- обеспечивает стабильную атмосферу внутри пробоотборной камеры.

Во время экспонирования радон из воздуха диффундирует в пробоотборную камеру через резьбовой лабиринт. Дочерние продукты распада, образовавшиеся внутри пробоотборной камеры, осаждаются на стенках камеры, диаметр которой подобран таким образом, чтобы обеспечить эффективную регистрацию альфа-частиц от дочерних продуктов распада в трековом детекторе. Наличие двух трековых детекторов эквивалентно совмещению двух пробоотборных камер и трековыми детекторами, имеющими различную чувствительность из-за разной геометрии измерения радона и его ДПР, в одном корпусе. Это увеличивает надежность измерений и расширяет диапазон измеряемых значений объемной активности.

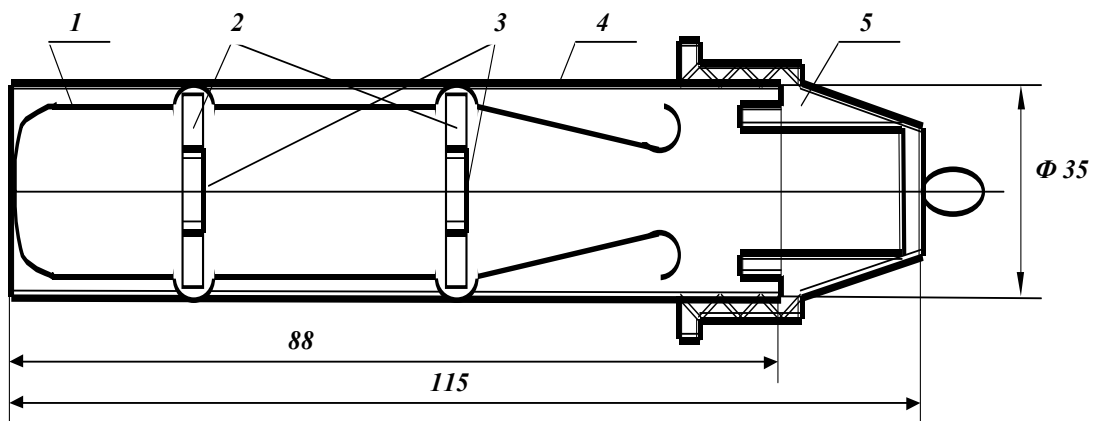


Рис. 5.13. Схема пробоотборной камеры ИРР-3М. 1 – держатель пялец; 2 - пяльцы; 3 - детекторы; 4 - корпус; 5 – крышка.

Интегрирующие трековые радиометры радона разработанные в С-ПбНИИРГ и Радиовом институте им. Хлопина представлены на рис. 5.14.

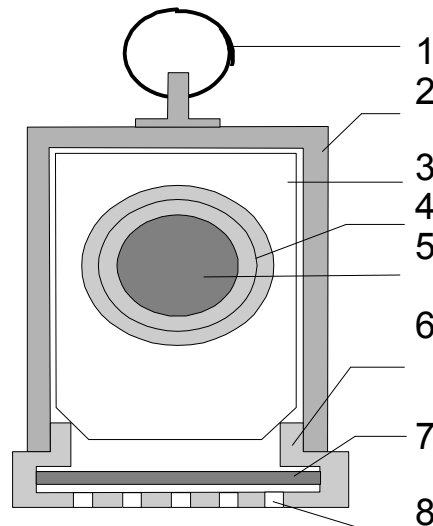


Рис. 5.14. Интегрирующий трековый радиометр радона:

- | | |
|---|------------------------------------|
| 1 - кольцо для подвешивания радиометра, | 5 - чувствительная пленка, |
| 2 - корпус радиометра, | 6 - крышка радиометра |
| 3 - кассета детектора, | 7 - диффузионная мембрана, |
| 4 - пядьцы, | 8 - отверстия в крышке радиометра. |

Интегрирующий трековый радиометр радона представляет собой цилиндрический корпус 2 с крышкой 6, плотно вставляющейся в стакан. В крышке корпуса имеются отверстия 8, закрытые диффузионной мембраной из силиконового каучука 7. Толщина мембраны подобрана таким образом, чтобы время диффузии через нее ^{222}Rn было значительно меньше его периода полураспада и значительно больше периода полураспада ^{220}Rn . При соблюдении этих условий ^{220}Rn практически не будет поступать во внутренний объем радиометра, тогда как ^{222}Rn будет свободно проникать в него. Внутри корпуса располагается кассета детектора 3, в которой помещаются пядьцы 4 для закрепления регистрирующей пленки 5. Для увеличения эффективности регистрации α -излучения детектором пленка покрыта с обеих сторон замедлителем из лавсана толщиной 20 мкм ($2,8 \text{ мг/см}^2$). На крышке детектора имеется кольцо 1 для подвешивания радиометра. Объемная активность ^{222}Rn внутри радиометра близка к объемной активности ^{222}Rn во внешнем воздухе. Чувствительным материалом детектора регистрируется α -излучение ^{222}Rn и образующихся из него дочерних продуктов.

Комплекс для определения интегральной ОА радона, использованный при проведении обследования уровней накопления радона в жилищах, состоит из следующих средств измерения и устройств:

- интегрирующие трековые радиометры радона;
- травильное устройство с водяным термостатом;
- автоматический искровой счетчик треков.

При наличии разделительной мембраны поступление радона в детектор замед-

ляется. Поэтому в течение первых нескольких часов экспонирования объемная активность радона в корпусе детектора будет ниже, чем объемная активность радона во внешней атмосфере. Вместе с тем, наличие мембраны задерживает в измерительном сосуде радон, накопившийся за время экспозиции. Поэтому и после ее окончания на трековый детектор будет продолжаться радиационное воздействие. Это компенсирует пониженную объемную активность радона на начальном этапе экспозиции. Иными словами, если оставить мембрану на сосуде после окончания экспозиции, когда наружная концентрация радона становится пренебрежимо мала, то оставшийся в сосуде радон скомпенсирует ту задержку, которая имела место в начале экспозиции. При практических измерениях, длящихся в течение достаточно длительного срока, этот эффект не играет существенной роли. Вместе с тем, его нужно учитывать при проведении калибровочных экспозиций длительность которых обычно лежит в пределах 3–7 сут.

Режимы обработки трековых детекторов. Химическое травление - наиболее распространенный метод "фиксирования" и дальнейшего увеличения протяженных зон первичных дефектов в твердотельных трековых детекторах. Такое травление осуществляется путем относительно быстрого растворения поврежденной области вещества в треке.

Линейную скорость травления вдоль зоны первичных дефектов определяют обычно как скорость травления трека v_t . Травление окружающего неповрежденного вещества обозначают как скорость травления поверхности v_b . Последняя является постоянной для данного вещества и условий обработки. Скорость травления вдоль трека зависит также и от уровня радиационного повреждения в зоне трека (от свойств трекообразующей частицы).

Для пластиков наиболее часто применяемый травитель - водный раствор NaOH и KOH с концентрацией в области от 1 до 12 N. Обычно температура травящего раствора лежит в пределах 40-70°C. Добавление органических растворителей (в частности этилового спирта) в щелочные растворы позволяет заметно изменить как V_t , и V_b , так и их соотношение. При этом можно добиться заметного улучшения чувствительности и избирательности детектора. Однако необходимо иметь в виду, что составы с органическими растворителями могут нарушать механические свойства детекторов, делать пленки более хрупкими.

Таблица 5.9

Режимы обработки пластиков, облученных α -частицами

| Пластик | Травитель | Концентрация | t , °C | Время | Промывка |
|-----------------|-------------------|--------------|----------|-----------|---|
| CR-39 | NaOH | 6N | 85 | 4 ч | Вода |
| CR-39 | NaOH | 6 N | 70 | 4 ч | Вода |
| CR-39 | NaOH | 2,25 N | 70 | 16 ч | Вода |
| CN-85 | NaOH | 2,5 N | 60 | 3 ч | 1. Вода 2. C ₂ H ₅ OH (25%) |
| CN-85 | NaOH | 6 N | 50 | 1,5 ч | Вода |
| CA-80-15 | NaOH | 10,7 N | 50 | 1 ч | Вода |
| LR-115 | KOH | 7 N | 60 | 25 мин | 1. Вода 2. C ₂ H ₅ OH (100%) |
| LR-115 | NaOH | 2,5 N | 60 | 2 ч | Вода |
| Bexford-190 | NaOH | 6 N | 60 | 6 ч | 1. H ₂ SO ₄ (5%) 2. Вода |
| Daicell | NaOH | 6 N | 40-60 | Нет свед. | Вода |
| ПММК, оргстекло | KMnO ₄ | Насыщенный | 85 | 8 мин | Вода |

Электретные детекторы. Электретные детекторы радона появились сравнительно недавно и вызывают в настоящее время значительный интерес у специалистов. Под торговой маркой E-PERM[®] электретные детекторы производятся фирмой Rad Elec Inc. (США). Конструкция электретного детектора показана на рис.5.15.

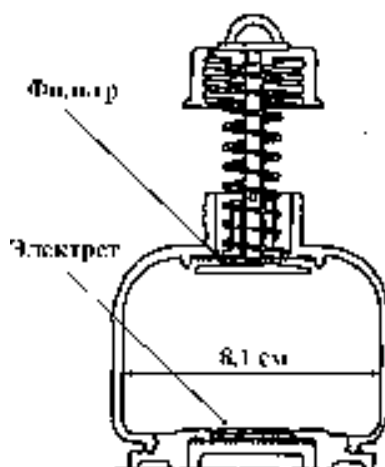


Рис.5.15. Конструкция электретного детектора радона

Детектор представляет из себя сосуд из углеродсодержащего полипропилена (E-PERM[®]) объемом ~150-200 мл, закрывающийся крышкой с вмонтированным в нее штоком. На дне измерительной камеры располагается электрет – поляризованная пластина диэлектрика. В нерабочем состоянии крышка камеры завинчена, радон в нее не поступает, а поверхность электрета закрыта специальной крышкой. При установке детектора пробка открывается, убирается

крышка с поверхности электрета. Радон поступает в камеру через горловину сосуда, снабженную дополнительным фильтром, отсекающим торон и дочерние продукты распада. *Образующиеся в объеме сосуда при распаде ДПР радона ионы под действием электрического поля оседают на поверхность электрета.* При этом потенциал электрета понижается. Измерив с помощью специального электрометрического вольтметра потенциал электрета до экспозиции и после нее, можно оценить среднюю концентрацию радона в воздухе за период экспозиции. Чувствительность электретного детектора E-PERM[®] составляет 370 Бк/(м³·сут) при диапазоне измерений (ресурсе) примерно 10⁴ Бк/(м³·сут). Имеются детекторы с чувствительностью 3700 Бк/(м³·сут) с диапазоном работы около 10⁵ Бк/(м³·сут).

При помощи электретных детекторов E-PERM[®] можно производить измерения средних объемных активностей торона в воздухе. Для этого одновременно экспонируются два детектора. Один из них чувствителен только к радону. Конструкция другого детектора отличается наличием дополнительных отверстий в боковых стенках сосуда, закрытых тонким слоем (7,5 мг/см²) покрытого углеродом тивека. Через эти отверстия в камеру может проникать только торон, а не радиоактивные аэрозоли. Сопоставляя показания двух детекторов, можно определить среднюю за период экспозиции объемную активность торона в воздухе. Имеются также специальные приспособления для определения удельной активности радона в воде при помощи электретных детекторов E-PERM[®]. В них экспонирование электретного детектора радона производится в герметичном сосуде, содержащем пробу исследуемой воды. Однако при таком способе определения на результаты эксперимента может оказывать существенное влияние высокая влажность внутри сосуда, что требует корректно проведенных калибровочных измерений. Тем не менее, комплексный подход к проблеме, высокая чувствительность, оперативность измерений и простота эксплуатации делают электретные детекторы радона перспективными для проведения массовых обследований.

Методы ретроспективного определения объемной активности радона в помещении

В связи с необходимостью получения прямых эпидемиологических данных по облучению продуктами распада радона в жилищах, сравнительно недавно были начаты и продолжаются до сих пор исследования среди групп населения по методологии "случай-контроль". Для радиационно-индуцированного рака легких, обусловленного воздействием радона и его ДПР, характерен длительный латентный период, и важнейшим параметром, определяющим риск для здоровья, является суммарное облучение в период от 5 до 30 лет до возникновения заболевания. Трудность восстановления экспозиции по радону за подобный период обусловлена непостоянством объемной активности (ОА) радона в помещении в течение этого времени, возможными переездами индивида, сменой режимов

содержания жилищ и другими факторами. Поэтому проведение оценки риска на основе текущих измерений ОА радона в помещениях далеко не всегда является обоснованным.

Общеизвестно, что уровень радона в помещении подвержен значительным вариациям – как суточным, так и сезонным. Даже достоверно оцененное среднегодовое значение может отличаться от прошлого уровня вследствие старения или модернизации здания, отличий в условиях содержания и режимах проветривания настоящих и прежних домовладельцев. Кроме того, человек может неоднократно сменить место жительства за интересующий период, и проведение измерений в каждом жилище может оказаться невозможным.

Не так давно для проведения прямых ретроспективных оценок риска было предложено измерять активность долгоживущих продуктов распада радона, которые могут накапливаться в различных объектах, постоянно находящихся в помещениях. Период полураспада долгоживущего ^{210}Pb составляет 22 года, поэтому время накопления этого нуклида и последующей радиоактивной цепочки соизмеримо со временем реализации радиационно-индуцированного рака легких. Для ретроспективных оценок экспозиции по ОА радона используют методы поверхностных и объемных ловушек.

Метод поверхностных ловушек. Уже через несколько лет после открытия радия было замечено, что изотопы эманации радия (названные позднее радоном) могут формировать устойчивые радиоактивные отложения на некоторых поверхностях, таких как стекло. Физика процесса заключается в том, что при α -распаде осевших на поверхность короткоживущих ДПР радона ядро отдачи получает достаточную энергию для самоимплантации внутрь нее при соответствующем направлении импульса отдачи. В 1988 году было предложено использовать стеклянную поверхность объектов в помещениях в качестве ретроспективного монитора экспозиции по радону с α -излучающим ^{210}Po в качестве изотопного индикатора. С помощью импульсной ионизационной камеры был проведен α -спектрометрический анализ различных стекол, находящихся в жилых помещениях. На рис. 5.16 представлены типичные спектры α -излучения на поверхности стекла, обращенной в комнату (рис. 5.16, а), и на обратной поверхности стекла, изолированной от атмосферы помещения (рис. 5.16, б). Энергетические спектры стекол со стороны, имеющей контакт с внешней атмосферой, имели четко выраженный пик, соответствующий энергии излучения ^{210}Po (5,3 МэВ).

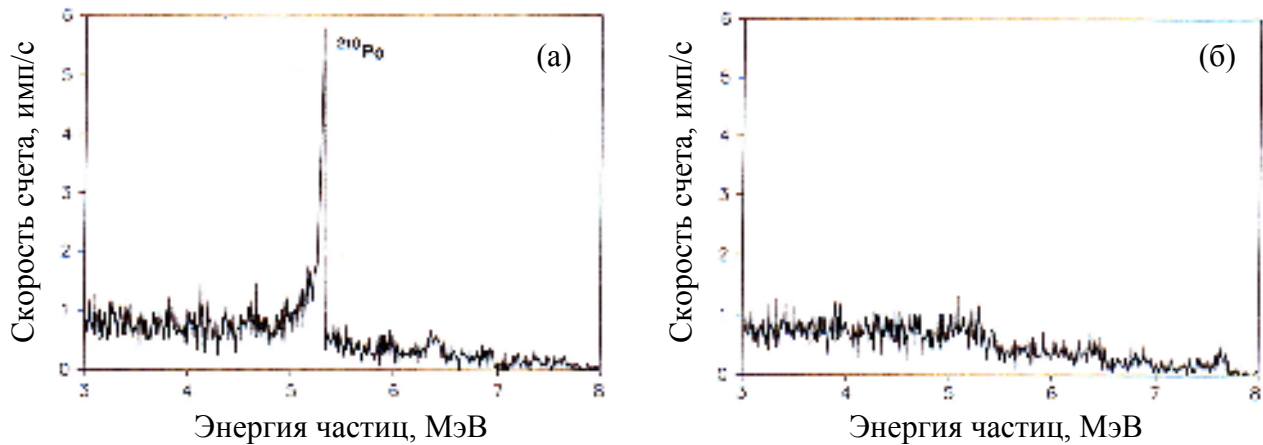


Рис. 5.16. Спектры α -излучения стекла с портретной рамки
(а) – сторона, обращенная в комнату; (б) – сторона, обращенная к фотографии

Выбор стеклянных объектов (главным образом это зеркала, стекла мебели, рамки фотографий и картин) в качестве естественного монитора радона не случаен. Такие предметы являются обычными для любого жилища. Для них, как правило, хорошо известны возраст и история перемещений, и обычно они сопровождают человека при переездах. Со стеклом обращаются с особой осторожностью, поверхность поддерживается чистой и сохранной от повреждений, царапин и прочего. Ровная и гладкая поверхность стекла позволяет с хорошей достоверностью моделировать приграничные процессы и с высокой точностью измерять удельную и поверхностную активность. Все это делает стекло прекрасным материалом для интегрального измерения прошлых уровней содержания дочерних продуктов распада радона в воздухе помещений.

В традиционной практике радоновых обследований для проведения интегрирующих измерений ОА радона широко используются твердотельные ядерные трековые детекторы тяжелых заряженных частиц. Являясь простым и надежным средством измерения, трековые материалы нашли применение и в ретро-спективной дозиметрии радона, как детекторы внешнего приповерхностного α -излучения стекол. Основным требованием, предъявляемым в данном случае к детектору, является дискриминация фонового α -излучения стекла, формируемого природными α -излучающими радионуклидами – членами природных радиоактивных цепочек урана и тория. Пространственно-энергетический спектр фона является сплошным и неравномерным во всем диапазоне вплоть до максимальной энергии 8,8 МэВ.

Наиболее простой метод заключается в установке на поверхности стекла трекового детектора CR-39, имеющего широкий диапазон регистрируемых энергий α -частиц (от 0,1 до 60 МэВ). для оценки фонового излучения на "активной" стороне стекла устанавливается второй детектор CR-39, помещаемый на слой лавсанового поглотителя, покрытого тонкой алюминиевой фольгой (общая толщина 1,8 мг/см²). При этом приповерхностное излучение проходит через поглотитель, а фоновое излучение, поглощаясь в объеме стекла и слое поглотителя, регистрируется в гораздо меньшей степени. Оба детектора устанавливаются

рядом друг с другом на одной и той же поверхности стекла. Оценки показали, что слой поглотителя снижает количество треков, формируемых за счет излучения от ^{210}Po , на 20%, а количество фоновых треков – на 50%. По соотношению треков, зарегистрированных двумя детекторами, оценивается активность ^{210}Po .

Во втором методе в паре с детектором CR-39 ставится детектор другого типа – LR-115, имеющий узкий энергетический диапазон (1,2 ÷ 4,8 МэВ). Если детектор CR-39 регистрирует все излучение, то отклик детектора LR-115 целиком определяется фоном стекла.

В УГТУ-УПИ в 2004 году был разработан оригинальный ретроспективный детектор для определения экспозиции по ОА радона, позволяющий учитывать неоднозначность фонового радионуклидного состава стекла. Конструктивно разработанный детектор представлял собой сборку из трех или четырех слоев пленки LR-115, установленных на поверхность исследуемого объекта и изолированную от воздействия внешней атмосферы. При этом слои нитроцеллюлозы играют роль как регистрирующего материала, так и поглотителя, уменьшающего энергию проходящих через него α -частиц. Было рассчитано прохождение α -частиц через слои нитроцеллюлозы под различными углами и была рассчитана эффективность регистрации частиц различными слоями. Энергия α -излучения от ^{210}Po не попадает в рабочий диапазон материала LR-115, поэтому отклик первого слоя пренебрежимо мал и будет определяться фоновым излучением. После прохождения первого слоя энергия α -частиц снижается до значений не выше 3,7 МэВ, и они с высокой эффективностью регистрируются вторым слоем. Энергия излучения после второго слоя составляет менее 1,3 МэВ, и отклик третьего слоя на два порядка меньше предыдущего и также будет определяться фоном.

Многослойная конфигурация детектора на основе трекового материала LR-115 позволяет провести совместную оценку как приповерхностного содержания долгоживущего продукта распада радона ^{210}Po , так и удельного содержания природных радионуклидов. Система уравнений для трех слоев относительно поверхностной активности ^{210}Po и равновесных удельных активностей уранового и ториевого рядов имеет вид:

$$\begin{aligned} A_S^{\text{Po}} &= \frac{10^{-2}}{T \cdot S} (-1,65 \cdot N_1 + 6,23 \cdot N_2 - 12,1 \cdot N_3) \\ A_m^{\text{U}} &= \frac{10^{-2}}{T \cdot S} (7,0 \cdot N_1 + 0,32 \cdot N_2 - 28,8 \cdot N_3) \\ A_m^{\text{Th}} &= \frac{10^{-2}}{T \cdot S} (-3,49 \cdot N_1 - 0,32 \cdot N_2 + 28,8 \cdot N_3) \end{aligned} \quad (5.42)$$

где A_S^{Po} – поверхностная активность ^{210}Po (мБк/см²), A_m^{U} и A_m^{Th} – удельная активность стекла по суммарному содержанию α -излучающих радионуклидов

уранового и ториевого рядов (Бк/г), N_1-N_3 – количество треков зарегистрированных соответствующим детектором, T – длительность экспозиции детектора (сут), S – площадь рабочей поверхности детектора (см^2).

При решении задач ретроспективной дозиметрии радона недостаточно произвести точное определение поверхностной активности ^{210}Po , имплантированного в стеклянные объекты. Необходимо построение модели, связывающей поверхностную активность ^{210}Po со средними значениями ОА или ЭРОА радона в помещении.

В 1972 году W. Jacobi предложил модель, которая стала основой большинства используемых сегодня моделей. В модели рассматривалось относительное распределение нуклидов цепочки распада по всем выделяемым состояниям и их взаимодействие с учетом всевозможных процессов. Изначально в ней анализировалось поведение лишь короткоживущих ДПР радона, но логическое продолжение модели на долгоживущую часть цепочки распада радона позволяет применить ее в анализе поставленной задачи.

Все возможные переходы между состояниями модели и превращения радионуклидов схематически представлены на рис. 5.17. Сплошные стрелки соответствуют переходам, сопровождающим процессы радиоактивного распада, пунктирные стрелки относятся к процессам оседания на аэрозоли и поверхности, штрихпунктирная линия символизирует то, что часть осевшей активности удаляется со стекла во время очистки.

Для средних значений коэффициентов модели, связь средней объемной активности радона \bar{A}_V^{Rn} (Бк/ м^3) в помещении за время существования стеклянного объекта T с измеренной поверхностной активностью полония в стекле A_S^{Po} (мБк/ см^2) имеет вид:

$$\bar{A}_V^{Rn} = \frac{245 \cdot A_S^{Po}}{1 - \exp(-\lambda_{210_{Pb}} \cdot T)}. \quad (5.43)$$

При экспонировании объекта в течение 20 лет при среднем значении ОА радона $100 \text{ Бк}/\text{м}^3$ поверхностная активность ^{210}Pb (^{210}Po) составит $0,19 \text{ мБк}/\text{см}^2$. Данное уравнение справедливо для периодов времени, значительно превышающих период полураспада ^{210}Po (138 сут). Поскольку для ретроспективной оценки экспозиции по радону целесообразно использовать объекты с возрастом не менее 10 лет, для них это условие всегда выполняется.

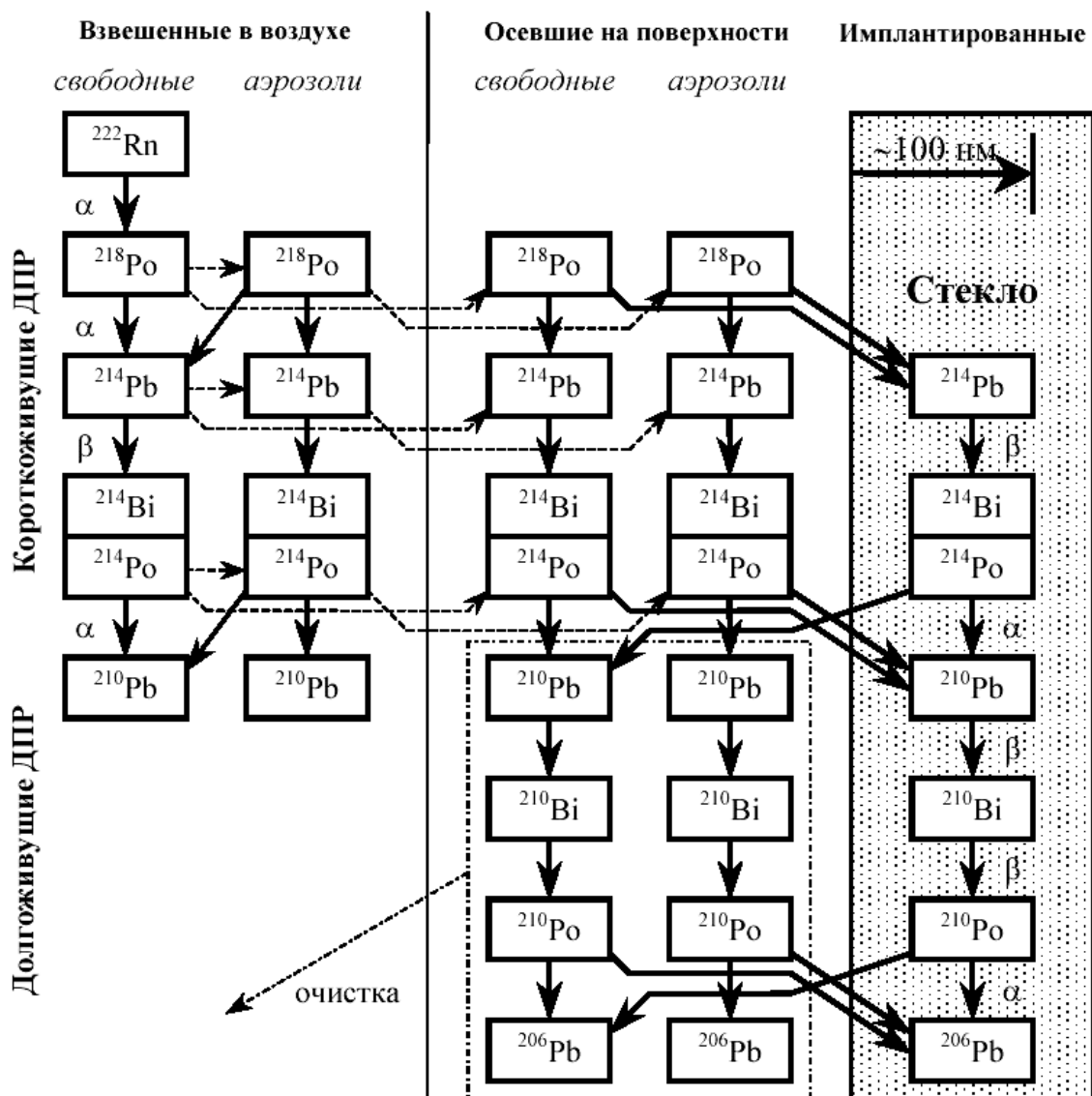


Рис. 5.17. Модель поведения продуктов распада радона в воздухе помещений

Объемные ловушки ^{210}Po . Объемными ловушками называют пористые и губчатые материалы, такие как, например, матрасы или мягкая мебель, которые всегда можно найти в жилищах. Газообразный радон может свободно диффундировать вовнутрь и распастся в порах. Образующие продукты распада оседают на поверхностях пор, и содержание накопленного ^{210}Po может быть измерено радиохимическими методами.

Принципиальным преимуществом метода является то, что, в отличие от поверхностных ловушек, содержание накопленного полония не зависит от концентрации аэрозолей в воздухе и других параметров помещения, влияющих на процессы оседания ДПР радона на поверхностях. Измеряемая величина напрямую зависит от объемной активности газообразного радона, а не его продуктов распада.

Метод был успешно опробован и отработан в Норвегии, Германии и Югославии, и обычной практикой является комбинированное использование методов поверхностных и объемных ловушек. Тем не менее, главным недостатком метода является полное разрушение исходного образца, и поэтому в условиях России, где замена обстановки комнаты значительной частью населения производится крайне редко, а старые вещи обычно не выбрасываются, а переходят на другой уровень использования, метод объемных ловушек тяжело применить в широкомасштабных исследованиях.

Глава 6. ИЗМЕРЕНИЕ ОБЪЕМНОЙ АКТИВНОСТИ РАДИОАКТИВНЫХ АЭРОЗОЛЕЙ

6.1. Краткая характеристика аэрозолей

Аэрозоли — это системы, представляющие собой твердые или жидкие частицы, взвешенные в газообразной среде. По механизму возникновения различают аэрозоли диспергации и конденсации. Диспергационные аэрозоли появляются при разбрызгивании жидкостей, измельчении твердых тел, взмучивании порошков и т. п., а конденсационные аэрозоли — при конденсации паров воды, металлов и их окислов и др. Механизмы возникновения радиоактивных аэрозолей могут быть точно такими же, как и у стабильных аэрозолей. Вместе с тем, помимо указанных процессов, радиоактивные аэрозоли могут возникать и в результате особых явлений. Так, возможна активация первоначально неактивных частиц под действием нейтронного облучения; при распаде некоторых радиоактивных газов (например, радона, торона) появляются короткоживущие радиоактивные изотопы висмута и полония, представляющие собой твердые частицы; процесс образования радиоактивных аэрозолей наблюдается у поверхности с α -активными веществами, когда в результате обратной отдачи из препарата в воздух могут вылетать атомы и увлекаемые ими агрегаты, состоящие из нескольких активных атомов. Свойства аэрозолей зависят от природы вещества, из которого состоят частицы, и состава газовой среды, концентрации аэрозолей по массе и числу частиц в единице объема, размера, формы и заряда частиц. Аэрозоли с твердой дисперсной фазой образуются при дроблении, измельчении, трении, сварке, обработке, распылении твердых веществ; аэрозоли с жидкой дисперсной фазой образуются при разбрызгивании, конденсации, испарении и др.

По дисперсности (диаметру частиц) аэрозоли делятся на следующие группы:

- мелкодисперсные, до 0,1 мкм;
- средней дисперсности, от 0,1 до 10 мкм;
- крупнодисперсные, более 10 мкм.

Крупнодисперсные аэрозоли оседают с ускорением и находятся в воздухе непродолжительное время. Аэрозоли средней дисперсности оседают в неподвижном воздухе с постоянной скоростью, зависящей от диаметра и удельного веса частиц (частицы диаметром 1 мкм оседают на 1 м в среднем за несколько часов). Мелкодисперсные аэрозоли движутся подобно атомам и молекулам воздуха, т. е. находятся в броуновском движении и практически не оседают.

Основные процессы, которые наблюдаются в аэрозолях, — это седиментация, броуновское движение и диффузия, коагуляция. Аэрозольные частицы, находящиеся во взвешенной среде, подвергаются влиянию ряда факторов (гравитация, сопротивление среды, электрические и магнитные поля и т. п.).

В вакууме аэрозольные частицы движутся в гравитационном поле, подчиняясь закону свободного падения. В газовой среде действуют сила выталкивания и сила сопротивления среды, поэтому движение частиц в этом случае становится

равномерным, ибо сила гравитации и сопротивления становится равной. Скорость седиментации частиц с размерами до 1 мкм в газовой среде подчиняется следующей закономерности:

$$v = \frac{2}{9} \cdot \frac{r^2 g (\rho_1 - \rho_2)}{\eta_{gas}} \quad (6.1)$$

где v — скорость седиментации; r — радиус частиц; g — ускорение силы тяжести; ρ_1 — плотность частицы; ρ_2 — плотность газовой среды; η_{gas} — вязкость газовой среды.

Скорость седиментации частиц меньшего размера незначительна. В табл. 6.1 показана скорость седиментации частиц кремния в воздухе в зависимости от их размеров.

Таблица 6.1
Скорость седиментации кремния в зависимости от размера частиц

| Радиус частиц, мкм | Скорость седиментации, см/с | Радиус частиц, мкм | Скорость седиментации, см/с |
|--------------------|-----------------------------|--------------------|-----------------------------|
| 50 | 47 | 5 | 0,7 |
| 25 | 15 | 2,5 | 0,18 |
| 20 | 10 | 1 | 0,03 |
| 10 | 3 | 0,5 | 0,01 |

Причиной броуновского движения является динамическое воздействие на частицу давления, вызываемого молекулами газообразной среды, которые совершают хаотическое тепловое движение и ударяются о поверхность частицы. Для относительно крупных частиц число этих ударов в единицу времени настолько значительно, что движение частицы отсутствует. Для мелких частиц число молекул, ударяющихся о поверхность частицы, невелико, поэтому становятся заметными колебания в числе ударов в единицу времени. В результате этого величина давления, действующего с разных сторон частицы, не будет постоянной, поэтому она в этом случае совершает беспорядочное движение. Перемещение частиц в произвольном направлении x за время t может быть найдено по формуле:

$$\Delta x = \sqrt{2Dt} \quad (6.2)$$

где D — коэффициент диффузии частиц аэрозоля.

В табл. 6.2 представлены величина D и скорость седиментации (v) для частиц разного размера (частиц шарообразной формы с плотностью, равной единице).

Таблица 6.2

Величины D , Δx , v в зависимости от размеров аэрозольных частиц

| Радиус частицы, см | D , см ² /с | Δx , см/с | V , см/с |
|--------------------|--------------------------|----------------------|----------------------|
| 10^{-7} | $1,28 \cdot 10^{-2}$ | $1,6 \cdot 10^{-1}$ | $1,31 \cdot 10^{-6}$ |
| 10^{-6} | $1,35 \cdot 10^{-4}$ | $1,64 \cdot 10^{-2}$ | $1,37 \cdot 10^{-5}$ |
| 10^{-5} | $2,21 \cdot 10^{-6}$ | $2,1 \cdot 10^{-3}$ | $2,24 \cdot 10^{-4}$ |
| 10^{-4} | $1,27 \cdot 10^{-7}$ | $5,03 \cdot 10^{-4}$ | $1,28 \cdot 10^{-2}$ |
| 10^{-3} | $1,38 \cdot 10^{-8}$ | $1,66 \cdot 10^{-5}$ | 1,21 |

Коагуляция аэрозоля — это процесс слипания или слияния частиц при соприкосновении их друг с другом. Слипание частиц происходит под влиянием молекулярных сил приближения и электрического притяжения. Как правило, в аэрозолях можно обнаружить скрытую и явную коагуляцию. При скрытой коагуляции частицы размером 0,1 мкм образуют небольшие по размеру агрегаты, которые оседают с малой скоростью. В дальнейшем эти агрегаты образуют крупные частицы (явная коагуляция), выпадающие быстро.

6.2. Условия представительности проб

Правильность выводов, основанных на единичном результате контроля радиоактивного загрязнения воздуха, зависит от того, насколько представительно произведено измерение. Поскольку каждое измерение содержания радиоактивного вещества в контролируемой среде в общем случае предполагает отбор некоторой пробы, то говорят о необходимости обеспечения представительности пробы по пространственной, временной и физико-химической характеристикам. При отборе проб газообразных радиоактивных примесей вопрос о представительстве проб может стоять достаточно остро, например, из-за различной эффективности улавливания разных газообразных компонентов применяемым сорбентом. Однако чаще и острее эти вопросы возникают при отборе проб радиоактивных аэрозолей, особенно в случае грубой дисперсности системы. Ввиду большой изменчивости грубодисперсной аэрозольной системы вопрос о правильном выборе точки и времени отбора пробы может оказаться решающим для последующей интерпретации полученных результатов. Кроме этого, безусловно, важного вопроса, остается не менее сложная задача обеспечения представительности отбираемой аэрозольной пробы в самой точке пробоотборника. Эта последняя задача будет решена, если удастся обеспечить три основных требования по представительности пробы:

- спектр размеров радиоактивных аэрозольных частиц в пробе должен соответствовать спектру размеров в контролируемой среде;
- количество контролируемого вещества в пробе должно быть достаточно большим для его надежного измерения в течение приемлемого срока;
- вклад любой отдельной аэрозольной частицы в общее количество радиоактивного вещества в пробе должен быть пренебрежимо мал, чтобы колебания

в числе отдельных радиоактивных аэрозольных частиц не искажали результат измерения.

Поскольку отбор проб радиоактивных частиц из газообразной среды осуществляется практически всегда аспирационным методом с помощью побудителя движения среды и улавливающего элемента (фильтра), размещенного в составе пробоотборной насадки, выполнение первого из названных выше требований связано с обеспечением поступления внутрь пробоотборной насадки частиц любых размеров в той же концентрации, что и в исследуемой среде. При отборе проб из направленных (ламинарных) потоков, когда линии тока среды совпадают с траекториями частиц, последнее условие достигается относительно просто, если применить конусообразную насадку (рис. 6.1) и выравнять линейные скорости движения среды вдали от пробоотборника и на входном сечении пробоотборной насадки (изокинетический пробоотбор).

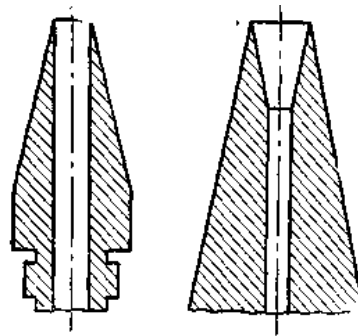


Рис. 6.1. Конусообразные насадки

В случае переменных по направлению потоков можно обеспечить самоориентацию пробоотборной насадки по принципу флюгера. Однако следует иметь в виду, что весьма часто встречаются ситуации, когда траектории крупных аэрозольных частиц могут не совпадать с линиями тока среды или когда потоки отличаются значительной турбулентностью. Задача обеспечения представительного поступления частиц разных размеров внутрь пробоотборника в этих случаях встречает большие принципиальные методические затруднения, которые можно преодолеть лишь достаточно сложным способом, едва ли приемлемым в практике радиационного контроля. Таким образом, применение обычных средств пробоотбор а может привести к существенной погрешности в оценке истинной концентрации диспергированного в газообразной среде радиоактивного вещества, и это обстоятельство необходимо постоянно иметь в виду при интерпретации соответствующих результатов измерения, в особенности при отборе проб внешней среды. В помещениях этот фактор можно не учитывать. Поскольку в практике радиационного контроля часто представляет интерес не абсолютная концентрация радиоактивного вещества как таковая, а ингаляционная опасность, поэтому можно применить селективные пробоотборники, имитирующие органы дыхания человека.

6.3. Методы отбора проб аэрозолей

В основе методов количественного определения аэрозолей в воздухе, в том числе и радиоактивных веществ лежит или *косвенный способ*, когда предварительно извлекают частицы из газовой среды с последующим исследованием их, или *прямой метод* изучения радиоактивности радионуклида в определенном объеме газовой среды. Методы, при которых твердая или жидкая фаза отделяется от газовой среды, чаще всего основаны на седиментации, фильтрации, инерционном и электростатическом осаждении. Прямой метод предполагает использование проточных ионизационных камер, счетчиков или камер, в которые отбирается для исследования определенный объем воздуха. *Наиболее распространенным методом исследования содержания радиоактивных аэрозолей в воздухе является косвенный метод, что в первую очередь обусловлено необходимостью определения малых объемных активностей, для которых чувствительность прямых методов недостаточна.*

При *седиментационном методе* определения содержания в воздухе аэрозолей *седиментация происходит из неограниченного объема*, поэтому результаты исследования выражаются в числе или массе частиц, осевших на единице площади за определенное время. Седиментационные методы позволяют определять частицы размером от 1 до 30 мкм. *Данный метод используется при контроле за уровнем радиоактивных выпадений из атмосферного воздуха.* Отбор проб в этом случае осуществляется при помощи кювет и других емкостей (банки, баки и т. п.). Следует отметить, что на степень осаждения радиоактивных веществ значительное влияние оказывают аэродинамические условия отбора проб. Поэтому точки для сбора осадков должны быть постоянными.

Для сбора атмосферных осадков, как правило, применяют кюветы с предварительно нанесенным на их дно тонким слоем глицерина. Сроки экспозиции при отборе проб осадков зависят в первую очередь от уровня радиоактивности атмосферы и количества осадков. Обычно кюветы выставляются на сроки, превышающие один месяц.

После экспозиции из кювет сливают атмосферные осадки, а их поверхность протирают сухими марлевыми салфетками. Слив помещают в фарфоровую чашку и выпаривают. Марлевые тампоны озоляются при температуре не более 400—500°C. В дальнейшем полученные осадки и зола смешиваются и подвергаются исследованию в зависимости от поставленных задач (радиометрические исследования, радиохимические, спектрометрические и т. д.).

При контроле содержания радиоактивных веществ в воздухе широкое применение нашли *аспирационные методы отбора* проб.

Все возможные условия отбора проб при помощи этого метода можно условно разделить на пять групп:

- Открытые участки (атмосферный воздух).
- Помещения производственного, вспомогательного и другого назначения.

- Замкнутые объемы, находящиеся в условиях нормального барометрического давления (или приближающегося к нему): камеры, боксы, вентиляционные каналы и т. п.
- Замкнутые замкнутые объемы, находящиеся под разряжением (вакуумные линии и установки).
- Замкнутые объемы, находящиеся под избыточным давлением (компрессорные коммуникации и установки).

Принципиальные схемы отбора проб воздуха аспирационным методом для перечисленных условий представлены на рис. 6.2, 6.3.

На рис. 6.2 показана схема отбора проб на открытых участках и в производственных, вспомогательных и других помещениях. Эта схема состоит из аспиратора, фильтра с фильтродержателем и расходомера.

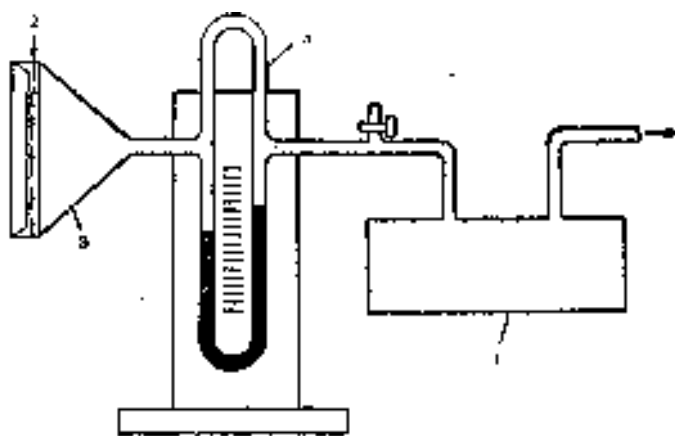


Рис. 6.2. Схема отбора проб на открытой местности. 1 – аспиратор; 2 – фильтр; 3 – аллонж (фильтродержатель); 4 – расходомер.

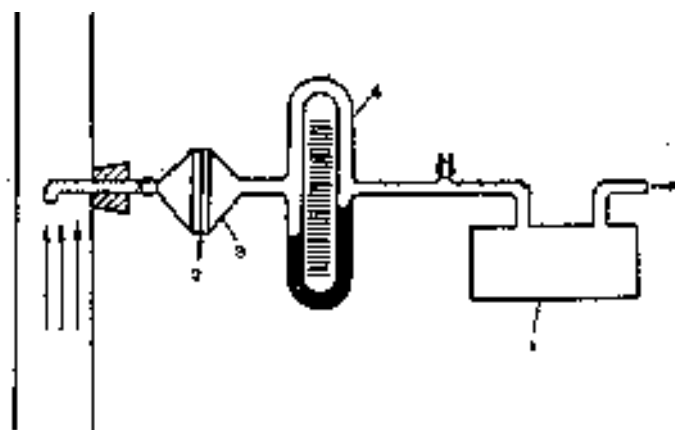


Рис. 6.3. Схема отбора проб из объемов, находящихся при нормальных условиях или под разряжением (обозначения те же, что на рис. 6.2).

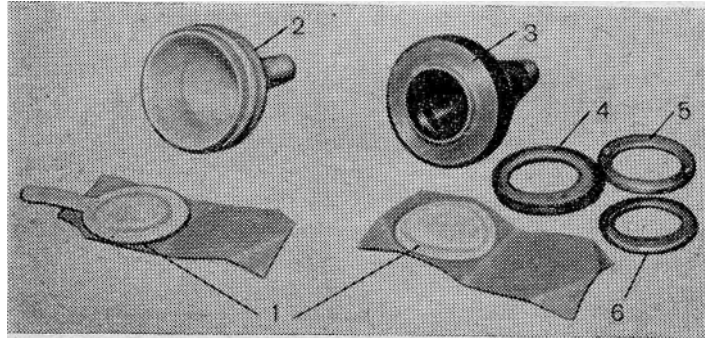


Рис. 6.4 Фильтры и фильтродержатели для отбора проб. 1 – фильтр в пакете из кальки; 2 – пластмассовый фильтродержатель; 3 – металлический фильтродержатель; 4 – корпус кассеты; 5 – гайка кассеты; 6 – кольцо прокладки в кассете.

При отборе проб из замкнутых объемов, находящихся в условиях нормального барометрического давления (или под разрежением), воздух или газ, забираемый из исследуемого объема (см. рис. 6.3), проходит пробоотборную трубку, специальный «закрытый» аллонж с фильтром, расходомер и аспиратор.

Отбор проб из замкнутых объемов, находящихся под давлением, предполагает возможность сбрасывания исследуемого воздуха в атмосферу или возвращение его в исследуемый объем, находящийся под давлением.

Характеристика фильтрующих материалов. В качестве материалов, используемых для накопления радиоактивных аэрозолей, применяются фильтры различного типа, поглотители, сорбенты и др.

Наибольшее применение нашли волокнистые фильтры типа АФА (аналитические фильтры аэрозолей; рис. 6.4), в которых используется фильтрующий материал ФП (фильтр Петрянова), а также мембранные фильтры, электрофильтры, импакторы и т. д.

Волокнистые фильтры представляют собой равномерный слой ультратонких волокон из различных полимеров. В зависимости от цели исследования можно использовать специальные марки фильтрующего материала.

Механизм задержки аэрозолей на этих фильтрах основан на следующих эффектах:

- 1) осаждении вследствие инерции (для частиц больших размеров);
- 2) осаждении вследствие диффузии (мелкодисперсные частицы);
- 3) осаждении за счет электростатического заряда;
- 4) осаждении за счет касания;
- 5) седиментации;
- 6) осаждении за счет ситового эффекта.

Инерционный эффект ($a_{ин.}$) пропорционален квадрату радиуса (r) частицы и скорости фильтрации (v);

$$a_{ин} \cong r^2 v$$

Диффузный эффект ($a_{дифф}$) обратно пропорционален скорости фильтрации и размеру частиц:

$$a_{\text{дифф}} \approx \left(\frac{1}{r\nu} \right)^{1/2}$$

Электростатический эффект ($a_{\text{эл}}$) зависит от величины электростатического заряда волокон, размера частиц и скорости фильтрации эта зависимость может быть представлена в виде:

$$a_{\text{эл}} \cong \frac{r^2}{\nu}$$

Эффект касания ($a_{\text{кас}}$) в первую очередь зависит от размера частиц.

$$a_{\text{кас}} \sim r$$

Эффект седиментации ($a_{\text{сед}}$) необходимо учитывать при фильтрации аэрозолей с частицами размером более 1 мкм. Зависимость седиментации от размера частиц и скорости фильтрации можно выразить так:

$$a_{\text{сед}} \cong \frac{r}{\nu}$$

Ситовый эффект имеет место в том случае, если размер частиц больше размера пор фильтров:

$$a_{\text{сит}} \approx r$$

На рис. 6.5 приведена общая схема различных эффектов, характерных для задержки аэрозоля.

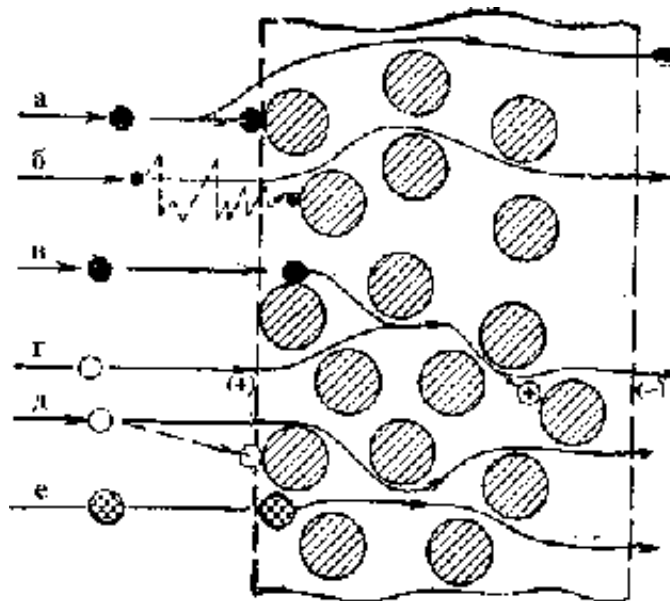


Рис. 6.5. Общая схема различных эффектов задержки аэрозольных частиц. а – инерционный; б – диффузионный; в – касания; г – электростатического притяжения; д – седиментационный; е – ситовый.

В санитарной практике нашли широкое применение фильтрующие материалы на основе различных волокон. В соответствии с назначением фильтров они имеют специальную маркировку. В начале ставятся буквы АФА, затем одна, две или три буквы, которые обозначают условное сокращение вида ана-

лиза аэрозолей и наименование материала. Например, АФА-РМП – радиометрический из перхлорвинила, АФА-РМА – радиометрический из ацетилцеллюлозы.

Кроме того, в отдельных случаях после условного буквенного сокращения ставятся цифры, которые обозначают площадь фильтра в квадратных сантиметрах: например, АФА-Х-18, АФА-РМП-20 и т. д.

Основные свойства волокнистых фильтров АФА. Аналитические фильтры АФА удовлетворяют практически всем требованиям, которые предъявляет санитарно-дозиметрическая практика к анализу аэродисперсных систем. К таким требованиям относятся:

1. Высокая эффективность улавливания аэрозолей любой дисперсности.
2. Обеспечение значительной пропускной способности.
3. Малое сопротивление потоку воздуха.
4. Необходимая механическая прочность.
5. Удобные в эксплуатации габариты и формы.

При определении концентрации радиоактивных аэрозолей при помощи волокнистых фильтров большое значение имеют такие показатели, как толщина (в миллиграммах на 1 см^2), аэродинамическое сопротивление (в миллиметрах водяного столба), распределение активности по толщине и коэффициент проскока, стойкость к химическим и температурным воздействиям, отношение к влаге.

Специальные исследования показали, что максимальным коэффициентом проскока сквозь материал ФП обладают частицы с диаметром $0,1\text{—}0,2 \text{ мкм}$.

Таблица 6.3.

Характеристика эффективности улавливания аэрозолей (в %) и радиус наиболее проникающих частиц (НПЧ) для некоторых фильтров типа АФА

| Тип фильтра | Скорость фильтрации, см/с | | | | |
|-----------------|---------------------------|------|-----|-------|-------|
| | 1 | 10 | 50 | 100 | 200 |
| АФА-РСР | 98—99 | 95 | 90 | 85—90 | 80—95 |
| АФА-РМП | 99—99,9 | 98 | 96 | 94 | 90—93 |
| Радиус НПЧ, мкм | 0,15—0,18 | 0,12 | 0,1 | 0,08 | 0,06 |

Средняя толщина фильтрующего материала у всех аналитических фильтров не превосходит $3\text{—}3,5 \text{ мг/см}^2$, т. е. не превышает пробега α -частиц с энергией 5 МэВ в веществе. Это обстоятельство ослабляет фактор поглощения α -частиц в объеме, фильтра, хотя необходимость введения соответствующей поправки остается. Материалы марки НЭЛ и особенно ЛФС специально изготовлены таким образом, чтобы аэрозольные частицы задерживались в лобовом слое, практически не проникая в толщу материала.

Специфическая особенность всех фильтров из материала ФП— их высокий электростатический заряд, играющий большую роль в улавливании аэрозоль-

ных частиц. При некоторых условиях, например при нахождении фильтра в условиях повышенной ионизации воздуха, электростатический заряд может быть нейтрализован, что увеличит коэффициент проскока частиц сквозь фильтр. Это обстоятельство необходимо иметь в виду при интерпретации некоторых результатов пробоотбора, проводившихся в специфических условиях. Электростатический заряд фильтров необходимо иметь в виду и при проведении некоторых измерений, когда электростатическое притяжение фильтра к окружающим деталям может существенно исказить результат измерения.

Важная особенность материала ФП — его способность просветляться под действием органических растворителей (дихлорэтан, ксилол, ацетон и др.). Эта особенность используется для анализа аэрозольных частиц с помощью оптического микроскопа, причем не только в запланированных исследованиях, когда можно применить специально разработанный фильтр АФА-ДП но и что важно, — в тех случаях, когда возникает необходимость анализа аэрозолей в пробе, отобранной при обычном контроле.

Просветление фильтра АФА-ДП или любого другого фильтра из материала ФПП проводится двумя методами: либо с помощью жидкого растворителя, либо в парах дихлорэтана.

Фильтр с отобранной пробой помещают на предварительно очищенное предметное стекло лобовым слоем к стеклу и на поверхность фильтра наносят каплю растворителя (94% ксилола и 6% трикрезилфосфата). Под действием раствора волокна смачиваются и затем постепенно растворяются с образованием студенистого слоя, который после высушивания превращается в тонкую прозрачную пленку. В такой пленке уловленные неорганические частицы хорошо различимы под микроскопом и сохраняет свое первоначальное распределение. При втором методе уложенный на предметное стекло фильтр помещают в эксикатор, на дно которого наливают дихлорэтан, и выдерживают в нем до полного просветления, а затем высушивают. При этом фильтр также превращается в прозрачную пленку с активностью во внешнем слое.

Способность материала ФП легко растворяться в органическом растворителе можно использовать для анализа дисперсности радиоактивных аэрозолей, задержанных фильтром. Для этого фильтр с уловленными частицами помещают в седиментационную колонку (стакан) с растворителем (ацетоном) и после первого растворения материала суспензию взбалтывают в колонке, где под действием силы тяжести частицы с разными аэродинамическими размерами достигают заданного уровня спустя разное время. Сливая рабочую жидкость с помощью набора кранов, получают порции с разными по размеру частицами. В качестве рабочей жидкости используют тот же растворитель, в котором предварительно растворен чистый материал ФП для достижения нужной вязкости и плотности.

Для улавливания аэрозолей и определения содержания радиоактивности йода и ртути в газовых средах в последнее время широко применяются новые сорбци-

онно-фильтрующие ленты типа СФЛ и аналитические фильтры типа АФАС (аналитический фильтр аэрозольно-сорбционный).

В соответствии с назначением они маркируются следующим образом: лента СФЛ-24-50-И и фильтры АФАС-И для определения йода и лента СФЛ-Р-50 и фильтры АФАС-Р — для определения ртути. Цифровое обозначение характеризует ширину ленты. Сорбционно-фильтрующие ленты и фильтры разработаны на основе фильтрующего материала (ФП) и мелко измельченного сорбента (уголь СУ-А с добавкой соли азотнокислого серебра— для улавливания газообразного йода и уголь СУ-А с добавкой йода—для улавливания паров ртути). Аспирационные методы отбора проб дают информацию об общей объемной активности радионуклидов в воздухе. Вместе с тем, в ряде случаев бывает необходима информация о дисперсности радиоактивных аэрозолей.

Импакторы разной конструкции применяются для оценки концентрации радиоактивных аэрозолей и их аэродинамических диаметров, чего нельзя достигнуть при использовании фильтров. Метод основан на эффекте инерционного осаждения аэрозолей на различных каскадах импактора. Эффективность инерционного осаждения пропорциональна скорости движения частиц и квадрату их диаметра. Недостаток — зависимость коэффициента осаждения от влажности и температуры воздушной среды. При отборе аэрозольной пробы при помощи импакторов происходит ее разложение на отдельные фракции в зависимости от размера частиц. Далее путем автордиографии или измерения скорости счета отдельных осадительных мишеней находят распределение числа радиоактивных частиц и их активности по отдельным фракциям. Это дает возможность проводить анализ дисперсного состава непосредственно в воздушном потоке, без предварительного осаждения частиц из газообразной среды.

К недостаткам каскадных импакторов следует отнести малую объемную скорость отборов проб. Поэтому они применяются для измерения лишь достаточно высоких концентраций радиоактивных аэрозолей.

На рис. 6.6 представлена схема импактора, состоящего из шести каскадов, выполненных из нержавеющей стали. При его эксплуатации после шестого каскада применяется фильтр, на котором осаждаются частицы, прошедшие через все ступени импактора, за фильтром помещается расходная диафрагма, служащая для измерения скорости прокачки воздуха через импактор. Импактор соединяется с форвакуумным насосом при помощи вакуумной резиновой трубки. Замер скорости прокачки осуществляется объемным дифференциальным манометром, подключенным к расходной диафрагме.

В каждом каскаде имеется сопло, через которое поступают аэрозоли, и плоская коллекторная пластинка, на которой осаждаются аэрозольные частицы. Диаметр у каждого последующего сопла меньше, чем у предыдущего, т. е. скорость прохождения аэрозоля ступенчато возрастает. Тяжелые частицы улавливаются первыми каскадами, а более легкие — последующими. Для увеличения эффективности прилипания аэрозольных частиц на коллекторные пластинки наклеивают прозрачную тереленовую пленку, смазанную вазелиновым маслом. Дан-

ные, характеризующие импактор, приведены в табл. 6.4. Зависимость эффективности осаждения аэрозольных частиц от их размера и ступени импактора приведена на рис. 6.7.

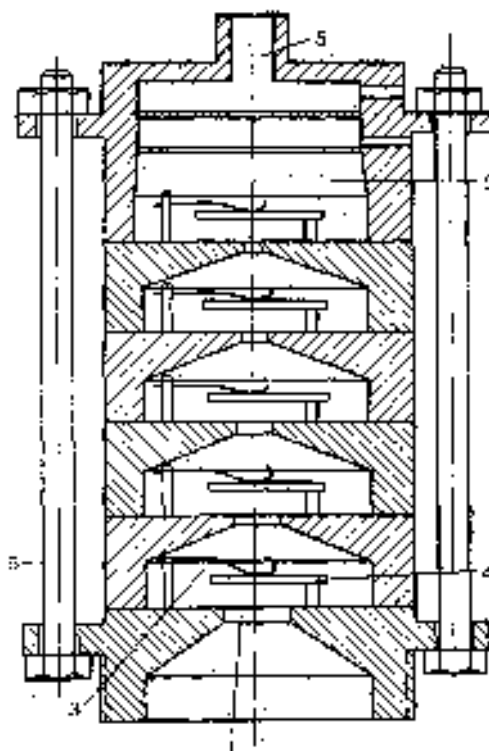


Рис. 6.6. Схема шестикаскадного импактора.

1 — расходная диафрагма; 2 — фильтр; 3 — пружина; 4 — коллекторная пластина; 5 — сопло; 6 — скрепляющий стержень.

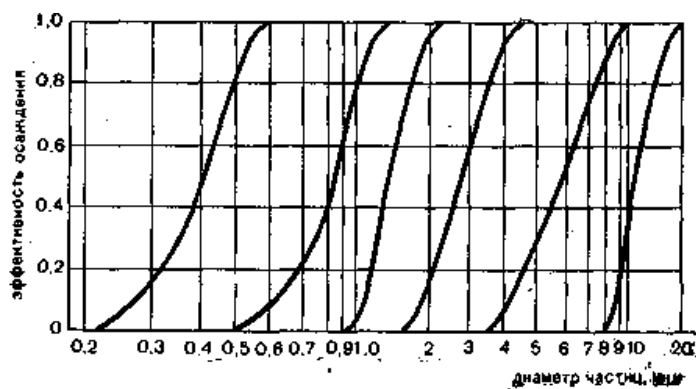


Рис. 6.7. Эффективность осаждения аэрозольных частиц в зависимости от их размеров и ступени импактора.

Таблица 6.4

Основные показатели шестикаскадного импактора

| № сопла | Диаметр сопла, см | Расстояние между соплами и коллекторами пластинки, см | Линейная скорость воздушной струи, см/с |
|---------|-------------------|---|---|
| 1 | 1,36 | 0,8 | 494 |
| 2 | 0,86 | 0,6 | 1 090 |
| 3 | 0,54 | 0,5 | 2 760 |
| 4 | 0,34 | 0,43 | 6 940 |
| 5 | 0,22 | 0,38 | 17 200 |
| 6 | 0,14 | 0,35 | 40 600 |

Измерение активности аэрозольных фильтров производится на радиометрических (по α - или β -излучению) или спектрометрических (по α - или γ -излучению) установках. Общие подходы к измерению активности проб мы рассмотрели в предыдущих разделах. Однако, при радиометрии проб по α - или β -излучению необходимо принимать во внимание такой фактор, как эффективность фильтра, учитывающую проскок аэрозолей через фильтр и самопоглощение излучения в материале фильтра.

6.4. Определение эффективности фильтра при измерении α - и β -активных аэрозолей

Определение эффективности фильтра при измерении альфа-активных аэрозолей. Задержка аэрозолей на фильтре при протягивании воздуха происходит не только в верхних слоях его, но и в слоях более глубоких. Так как пробег α -частиц в материале фильтра сравним с толщиной фильтра, то необходимо вводить поправку на поглощение α -частиц в нем.

Пусть имеется тонкий α -источник, испускающий n_0 α -частиц в единицу времени в направлении 2π . Если накрыть его тонким листом поглотителя, то количество α -частиц n_x , прошедших через поглотитель, определяется по соотношению, имеющему следующий вид:

$$n_x = n_0 \frac{\bar{R} - x}{\bar{R}} \quad (6.3)$$

где \bar{R} – средний пробег α -частиц в поглотителе; x – толщина поглотителя.

Зависимость счета эталонного α -источника на установке от толщины поглотителя для большинства установок представляет собой прямую линию (рис. 5. 10) и может быть записана в таком виде:

$$\frac{I_x}{I_0} = \frac{\delta - x}{\delta} \quad (6.4)$$

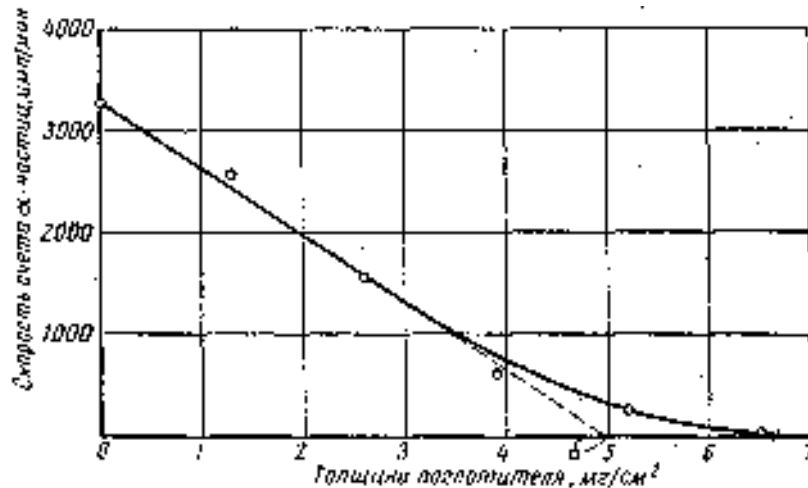


Рис. 6.8. Кривая зависимости скорости счета α -частиц от толщины фильтра Петрянова на сцинтилляционной приставке.

Величина δ представляет собой минимальную толщину слоя фильтра свыше которой α -частицы практически не регистрируются. Она зависит от эффективности счета установки и **всегда меньше пробега α -частиц в материале фильтра**. На практике величину δ можно определить по уравнению (6.4) по нескольким замерам эталонного источника без поглотителя и с поглотителем. Расчет ведется по формуле:

$$\delta = x \frac{I_0}{I_0 - I_x} \quad (6.5)$$

Для определения эффективности фильтра необходимо знать не только закон поглощения α -частиц в фильтре, но и распределение активных аэрозолей в фильтре и пропуск аэрозолей через фильтр. Распределение аэрозолей в фильтре зависит от дисперсности аэрозолей, скорости протягивания воздуха, толщины, волокон фильтра и его плотности, заряда пылинок и других факторов. Для монодисперсных аэрозолей и фильтра, имеющего равномерную плотность, фильтрация аэрозолей подчиняется **экспоненциальному закону**:

$$A = A_0 e^{-kx} \quad (6.6)$$

где A — активность аэрозолей, прошедших через слой фильтра толщиной x , мг/см²; A_0 — полная активность аэрозолей в прокачанном воздухе; k — коэффициент, характеризующий фильтрующую способность фильтра, см²/мг. Согласно уравнению (6.6), количество активной аэрозолей, осаждаемой в элементарном слое фильтра dx на глубине x , будет определяться по соотношению, имеющему следующий вид:

$$dA = kA_0 e^{-kx} dx \quad (6.7)$$

Под коэффициентом проскока K понимается отношение количества активной аэрозолей, прошедшей через фильтр толщиной a , к количеству активной аэрозолей, содержащейся в прокачанном воздухе, т.е.

$$K = \frac{A}{A_0} = e^{-ka} \quad (6.8)$$

Так как распределение аэрозолей в фильтрах при стандартных условиях аспирации одно и то же, то при прокачке воздуха через два фильтра проскок K может быть определен по соотношению:

$$K = \frac{A_2}{A_1} = \frac{I_2}{I_1} \quad (6.9)$$

где A_1 — активность аэрозолей на первом фильтре; A_2 — активность аэрозолей на втором фильтре; I_2, I_1 — количество импульсов на радиометрической установке при измерении второго и первого фильтров.

Проскок K необходимо определять для каждой серии замеров загрязненности воздуха радиоактивной пылью.

На практике обычно встречаются аэрозоли, имеющие различную дисперсность. В этом случае экспоненциальный закон фильтрации выполняется лишь приблизительно. Однако для дозиметрических замеров можно принять экспоненциальный закон фильтрации.

Для более точных измерений определяют распределение аэрозолей в фильтре экспериментально. Для этой цели воздух протягивается через 10 тонких фильтров. После измерения фильтров графическим путем определяется эффективность фильтра.

Зная распределение активной аэрозолей в фильтре и закон поглощения α -частиц в материале фильтра, выведем формулу эффективности фильтра.

Для этого предположим, что эффективность счета установки равна η (по отношению к углу 4π). Тогда соотношение между скоростью счета установки и активностью A_0 , содержащейся в прокачанном воздухе, исходя из уравнений (6.3) и (6.8), можно записать в виде:

$$dI_1 = \eta \frac{\delta - x}{\delta} dA = \eta \frac{kA_0}{\delta} e^{-kx} (\delta - x) dx \quad (6.10)$$

В случае $\delta < a$, где a — толщина фильтра,

$$I_1 = \eta \frac{kA_0}{\delta} \int_0^{\delta} e^{-kx} (\delta - x) dx \quad (6.11)$$

Эффективность фильтра η_F , по определению, есть отношение

$$\eta_F = \frac{I_1}{A_0 \eta} \quad (6.12)$$

Тогда из уравнений (6.10) и (6.11) эффективность фильтра определяется по соотношению:

$$\eta_F = \frac{k}{\delta} \int_0^{\delta} e^{kx} (\delta - x) dx \quad (6.13)$$

после решения которого получим:

$$\eta_F = 1 + \frac{e^{-k\delta}}{k\delta} - \frac{1}{k\delta} \quad (6.14)$$

Из уравнения (6.8) находим:

$$k = -\frac{\ln K}{a} \quad (6.15)$$

Следовательно, эффективность фильтра в случае $\delta < a$ может быть определена по формуле:

$$\eta_F = 1 + \frac{1}{\frac{\delta}{a} \ln K} \left(1 - e^{\frac{\delta}{a} \ln K} \right) \quad (6.16)$$

Таким же образом получена формула эффективности фильтра η_F в случае $\delta > a$. Она имеет вид:

$$\eta_F = 1 - K + \frac{a}{\delta} K \left(1 - \frac{1}{\ln K} + \frac{1}{K \ln K} \right) \quad (6.17)$$

В случае $\delta = a$ эффективность фильтра определяется по формуле:

$$\eta_F = 1 + \frac{1}{\ln K} (1 - K) \quad (6.18)$$

Определение эффективности фильтра при измерении бета-активных аэрозолей. Эффективность фильтра η_F может быть рассчитана, если принять экспоненциальный закон поглощения β -частиц в материале фильтра. ;
Скорость счета на установке от активных аэрозолей dA , осажденных на глубине x в слое dx , определяется, по соотношению

$$dI_1 = \eta \cdot dA \cdot e^{-\frac{0,693}{\Delta_{1/2}} x} \quad (6.19)$$

где $\Delta_{1/2}$ – слой половинного ослабления β -излучения в мг/см²;

η – эффективность счета β -частиц по отношению к углу 4π . Из уравнений (6.7), (6.19) имеем:

$$dI_1 = \eta A_0 k e^{-kx} e^{-\frac{0,693x}{\Delta_{1/2}}} dx \quad (6.20)$$

Если толщина фильтра равна a мг/см², то скорость счета на установке при измерении фильтра определяется по соотношению, имеющему вид:

$$I_1 = \eta A_0 k \frac{1}{k + \frac{0,693}{\Delta_{1/2}}} \left[1 - e^{-\left(k + \frac{0,693}{\Delta_{1/2}} \right) a} \right] \quad (6.21)$$

Учитывая формулы (6.12) и (6.20), имеем:

$$\eta_F = \frac{\ln K}{\ln K - \frac{0,693a}{\Delta_{1/2}}} \left[1 - e^{-\left(\frac{0,693a}{\Delta_{1/2}} - \ln K\right)} \right] \quad (6.22)$$

Величина проскока K определяется по формуле (6.9). Определение эффективности фильтра по формуле (6.22) необходимо производить лишь при энергии β -частиц, меньше 0,3 Мэв. Так как для изотопов, имеющих энергию больше 0,3 Мэв, $k \gg 0,693/\Delta_{1/2}$, то формула (6.22) принимает более простой вид:

$$\eta_F = 1 - K \quad (6.23)$$

В тех случаях, когда проскок аэрозолей через фильтр меньше 5% и им можно пренебречь, эффективность фильтра при таких допущениях равна единице.

При определении содержания активной аэрозолей в воздухе нет необходимости производить определение эффективности фильтра для каждого измерения. Достаточно произвести несколько определений эффективности фильтра F для одной партии фильтров и данных условий прокачки воздуха.

6.5. Определение поправки на распад для короткоживущих изотопов

При осаждении короткоживущей аэрозолей на фильтре происходит не только накопление активности в нем, но и ее распад. Обычно измерение активности, содержащейся в фильтре, производится через некоторое время после окончания протягивания воздуха через фильтр. За это время активность на фильтре также снижается из-за распада. Кроме того, иногда период полураспада изотопа может быть сравним со временем измерения фильтра на установке. Во всех этих случаях необходимо введение соответствующих поправок на распад. Если содержание активной аэрозолей в воздухе за время протягивания воздуха через фильтр не изменяется, скорость протягивания и проскок остаются постоянными, то накопление активности на фильтре будет идти по экспоненциальному закону. Накопление активности на фильтре во времени будет идти по следующему соотношению:

$$A_1 = \frac{\dot{A}}{\lambda} (1 - e^{-\lambda t_1}) \quad (6.24)$$

где A_1 – активность, накопившаяся на фильтре;

\dot{A} – активность, осаждающаяся на фильтре в единицу времени;

λ – постоянная распада данного изотопа;

t_1 – время прокачки воздуха через фильтр.

Если бы не происходило снижения активности за счет распада во время накопления аэрозолей на фильтре, то активность на нем была бы:

$$A = \dot{A} t_1 = \frac{A_1 \lambda}{1 - e^{-\lambda t_1}} t_1 = P_1 A_1 \quad (6.25)$$

Следовательно, поправка на распад P_1 за время прокачки воздуха имеет вид:

$$P_1 = \frac{\lambda t_1}{1 - e^{-\lambda t_1}} \quad (6.26)$$

или:

$$P_1 = \frac{0.693 \cdot t_1}{(1 - e^{-\lambda t_1}) T_{1/2}} \quad (6.27)$$

Распад активности на фильтре с момента окончания прокачки воздуха до момента измерения идет по экспоненциальному закону. Поправка на распад за это время t_2 определяется по соотношению:

$$P_2 = e^{\lambda t_2} = e^{\frac{0,693 t_2}{T_{1/2}}} \quad (6.28)$$

где t_2 — время, прошедшее с момента окончания прокачки воздуха через фильтр до момента измерения активности фильтра.

Итак, общая поправка на распад P определяется из уравнений (6.27), (6.28) и будет иметь вид:

$$P = \frac{0.693 \cdot t_1}{(1 - e^{-\lambda t_1}) T_{1/2}} \cdot e^{\frac{0,693 t_2}{T_{1/2}}} \quad (6.29)$$

Для радиоактивных изотопов, имеющих период полураспада, соизмеримый со временем измерения на радиометрической установке, необходимо определять скорость счета на установке в начальный момент счета. Обычно время измерения активности фильтра составляет несколько минут. В результате измерений на установке получается усредненная скорость счета. Так как скорость счета на установке снижается по экспоненциальному закону, то скорость счета в начальный момент измерения I может быть определена по соотношению, имеющему вид:

$$I = \frac{N\lambda}{1 - e^{-\lambda t_{изм}}} = \frac{N \cdot 0,693}{T_{1/2} \left(1 - e^{-\frac{0,693 t_{изм}}{T_{1/2}}} \right)} \quad (6.30)$$

где N — количество импульсов, сосчитанных установкой за время измерения $t_{изм}$.

Особую задачу представляют измерения объемной активности дочерних продуктов распада радона в воздухе. Это обусловлено тем, что как в воздухе, так и на фильтре будут присутствовать короткоживущие радионуклиды, являющиеся генетически связанными цепочками распада.

6.6. Измерение объемной активности ДПР радона в воздухе аспирационным методом

Динамика поведения ДПР радона при их осаждении на фильтр. Рассмотрим накопление активности продуктов распада ^{222}Rn на неподвижном фильтре с

единичной площадью, через который прокачивают воздух с объемной скоростью w , содержащий радон и продукты его распада. За основу примем упрощенную цепочку распада дочерних продуктов радона.



Пусть N_A , N_B и N_C — число атомов RaA, RaB и RaC, осевших на фильтре за время прокачки t . Полагая эффективность фильтра равную 1, для изменения числа атомов в единицу времени получаем

$$\begin{cases} \frac{dN_A}{dt} = n_A v - \lambda_A N_A \\ \frac{dN_B}{dt} = n_B v + \lambda_A N_A - \lambda_B N_B \\ \frac{dN_C}{dt} = n_C v + \lambda_B N_B - \lambda_C N_C \end{cases} \quad (6.32)$$

Каждое уравнение системы (6.32) отражает тот факт, что накопление данного продукта происходит как вследствие непосредственного улавливания его фильтром из воздуха, так и в результате распада предыдущего продукта по цепочке. Предполагается, что атомы радона фильтром не задерживаются, а продукты его распада существуют только в виде аэрозолей. Последние члены в уравнениях (6.32) определяют уменьшение числа атомов в единицу времени в результате распада данного продукта. Будем считать, что до начала прокачки воздуха через фильтр на нем не было радиоактивных атомов, т. е. для $t=0$ $N_A=N_B=N_C=0$. При этих начальных условиях систему (6.32) легко решить обычными способами. Решения имеют вид

$$\begin{cases} N_A = \frac{n_A v}{\lambda_A} F_{A1} \\ N_B = \frac{n_A v}{\lambda_B} F_{B1} + \frac{n_B v}{\lambda_B} F_{B2} \\ N_C = \frac{n_A v}{\lambda_C} F_{C1} + \frac{n_B v}{\lambda_C} F_{C2} + \frac{n_C v}{\lambda_C} F_{C3} \end{cases} \quad (6.33)$$

где F_{Ai} , F_{Bi} и F_{Ci} — следующие функции времени

$$\begin{aligned} F_{A1} &= 1 - \exp(-\lambda_A t) \\ F_{B1} &= 1 - \frac{\lambda_B \exp(-\lambda_A t)}{\lambda_B - \lambda_A} + \frac{\lambda_A \exp(-\lambda_B t)}{\lambda_B - \lambda_A} \\ F_{B2} &= 1 - \exp(-\lambda_B t) \\ F_{C1} &= 1 - \frac{\lambda_B \lambda_C \exp(-\lambda_A t)}{(\lambda_B - \lambda_A)(\lambda_C - \lambda_A)} - \frac{\lambda_A \lambda_C \exp(-\lambda_B t)}{(\lambda_A - \lambda_B)(\lambda_C - \lambda_B)} - \frac{\lambda_A \lambda_B \exp(-\lambda_C t)}{(\lambda_A - \lambda_C)(\lambda_B - \lambda_C)} \end{aligned} \quad (6.34)$$

$$F_{C2} = 1 - \frac{\lambda_C \exp(-\lambda_B t)}{\lambda_C - \lambda_B} + \frac{\lambda_B \exp(-\lambda_C t)}{\lambda_C - \lambda_B}$$

$$F_{C3} = 1 - \exp(-\lambda_C t)$$

Обозначим A_A , A_B и A_C активность RaA, RaB и RaC на фильтре через время t после начала прокачки. Тогда

$$\begin{cases} A_A = n_A \cup F_{A1} \\ A_B = n_A \cup F_{B1} + n_B \cup F_{B2} \\ A_C = n_A \cup F_{C1} + n_B \cup F_{C2} + n_C \cup F_{C3} \end{cases} \quad (6.35)$$

Из системы уравнений (6.35) видно, что увеличение активности на фильтре при заданных скорости и времени прокачки полностью определяется концентрацией радионуклидов RaA, RaB и RaC в исследуемом воздухе. При достаточно долгой прокачке наступит такое состояние, при котором число атомов, распадающихся на фильтре в единицу времени, станет равным числу атомов, улавливаемых фильтром в единицу времени; активность фильтра практически будет постоянной. Наступит насыщение активности на фильтре.

Суммарная активность фильтра $A = A_A + A_B + A_C$.

Практически удобнее однако, измерять не суммарную активность фильтра, а отдельно α - и β -активность. Принимая во внимание, что β -активными продуктами на фильтре являются RaB и RaC, а α -активными – RaA и RaC', получаем для α -активности фильтра в любой момент времени после начала прокачки

$$A_\alpha = A_A + A_C;$$

для β -активности

$$A_\beta = A_B + A_C.$$

При этом учтено, что RaC' находится в равновесии с RaC.

$$\begin{aligned} A_\alpha &= [n_A(F_{A1} + F_{C1}) + n_B F_{C2} + n_C F_{C3}] \cup \\ A_\beta &= [n_A(F_{B1} + F_{C1}) + n_B(F_{B2} + F_{C2}) + n_C F_{C3}] \cup \end{aligned} \quad (6.36)$$

На практике равновесие между продуктами распада эманации часто бывает нарушено, поэтому разработка методов определения концентрации активности эманации и дочерних продуктов при неизвестных соотношениях между ними приобретает особую важность.

Рассмотрим изменение активности продуктов распада радона RaA, RaB и RaC на фильтре после прекращения прокачки воздуха. Пусть N'_A , N'_B и N'_C – число атомов соответствующих нуклидов на фильтре через время t' после прекращения прокачки. Изменение числа атомов в единицу времени при отсутствии прокачки описывается уравнениями

$$\begin{cases} \frac{dN'_A}{dt} = -\lambda_A N'_A \\ \frac{dN'_B}{dt} = -\lambda_B N'_B + \lambda_A N'_A \\ \frac{dN'_C}{dt} = -\lambda_C N'_C + \lambda_B N'_B \end{cases} \quad (6.37)$$

Если предварительно через фильтр прокачивался исследуемый воздух в течение времени t , то при $t' = 0$ на фильтре было $N_A(t)$ атомов RaA, $N_B(t)$ атомов RaB, $N_C(t)$ атомов RaC. Начальные условия для системы (6.37):

$$\begin{cases} N'_A(0) = N_A(t) \\ N'_B(0) = N_B(t) \\ N'_C(0) = N_C(t) \end{cases} \quad (6.38)$$

определяются уравнениями (6.33).

Вместо измерения активности фильтра в различные моменты времени после прекращения прокачки более удобно измерять суммарное число α - или β -распадов за различные интервалы времени. В этом случае методика нахождения концентрации активности дочерних продуктов Rn сводится к следующему. Пусть M_A , M_B и M_C — числа атомов RaA, RaB и RaC, распавшихся на фильтре за время t' после прекращения прокачки. Очевидно,

$$\begin{cases} M_A = \int_0^{t'} \lambda_A N'_A dt' \\ M_B = \int_0^{t'} \lambda_B N'_B dt' \\ M_C = \int_0^{t'} \lambda_C N'_C dt' \end{cases} \quad (6.39)$$

Если в эти уравнения подставить значения N'_A , N'_B и N'_C из системы (6.37) и проинтегрировать, то получим

$$\begin{cases} M_A = N_A(t)F'_{A1} \\ M_B = N_A(t)F'_{B1} + N_B(t)F'_{B2} \\ M_C = N_A(t)F'_{C1} + N_B(t)F'_{C2} + N_C(t)F'_{C3} \end{cases} \quad (6.40)$$

В этих уравнениях коэффициенты F'_{ik} определяются теми же формулами, что и коэффициенты F_{ik} , если вместо времени прокачки t подставить время t' , прошедшее с момента прекращения прокачки.

Суммарное число α -распадов на фильтре за время t' будет равно

$$M_{\alpha} = M_A + M_C = N_A(t)(F'_{A1} + F'_{C1}) + N_B(t)F'_{C2} + N_C(t)F'_{C3} \quad (6.41)$$

Определяя экспериментально полное число α -распадов за различные интервалы времени, можно составить систему уравнений типа (6.41). В этой системе неизвестны значения $N_A(t)$, $N_B(t)$ и $N_C(t)$. Однако проведя несколько независимых измерений фильтра в различные интервалы времени эту систему можно будет решить относительно $N_A(t)$, $N_B(t)$ и $N_C(t)$ и, следовательно, относительно n_A , n_B и n_C .

Измеряя активность ДПР, осевших на фильтре, можно определить объемную активность отдельных дочерних продуктов распада в воздухе, а также уровень скрытой энергии (рабочий уровень WL, эквивалентную равновесную объемную активность радона). При этом требуемая для расчетов информация заключается как в абсолютной активности фильтра, так и в соотношении активностей в различные моменты после окончания прокачки.

Для определения объемной активности ДПР в воздухе и уровня скрытой энергии обычно проводят от одного до трех измерений активности фильтра. Они могут проводиться как в процессе прокачки, так и через некоторое время после ее окончания. Как правило, наиболее распространены методы, основанные на определении абсолютной α -активности фильтра. Рассмотрим некоторые методы определения дочерних продуктов распада ^{222}Rn в воздухе аспирационным методом.

Полностью устранить систематическую погрешность, обусловленную неизвестным сдвигом равновесия между отдельными ДПР, можно в методах, основанных на **трех измерениях активности** фильтра. В этом случае на основании данных трех измерений, проведенных в различное время после прекращения прокачки, решается система трех уравнений с тремя неизвестными и находятся концентрации каждого из дочерних продуктов (RaA-RaC).

Из методов измерения по трем точкам исторически более ранним является метод Томаса, не потерявший своей актуальности. В оригинальной методике Томаса отбор пробы воздуха на фильтр ведется в течение 5 мин. Далее производят измерение α -активности фильтра в периоды 2-5, 6-20 и 21-30 мин с момента окончания прокачки. Индивидуальные объемные активности ДПР в воздухе ($\text{Бк}/\text{м}^3$) определяются по следующим формулам:

$$\begin{aligned} A_V^{Po-218} &= \frac{37}{\varepsilon\eta_F\nu} [0,16894 \cdot N(2,5) - 0,0820 \cdot N(6,20) + 0,07753 \cdot N(21,30)], \\ A_V^{Pb-214} &= \frac{37}{\varepsilon\eta_F\nu} [0,00122 \cdot N(2,5) - 0,02057 \cdot N(6,20) + 0,04909 \cdot N(21,30)], \\ A_V^{Bi-214} &= \frac{37}{\varepsilon\eta_F\nu} [-0,02252 \cdot N(2,5) + 0,03318 \cdot N(6,20) - 0,03771 \cdot N(21,30)], \end{aligned} \quad (6.42)$$

где $N(2, 5)$, $N(6, 20)$, $N(21, 30)$ - число импульсов, зарегистрированных в соответствующие интервалы времени; ε - эффективность регистрации α -излучения (с учетом поправки на геометрию измерений); η_F - эффективность аэрозольного фильтра (эффективность задержки аэрозолей и учет самопоглощения α -излучения в фильтре); ν - скорость прокачки воздуха через фильтр, л/мин.

В методе Маркова прокачка воздуха через аэрозольный фильтр ведется в течение 5 мин. После этого с первой по четвертую и с седьмой по десятую минуты после окончания прокачки измеряют суммарную α -активность аэрозолей, осевших на фильтре. Формулы для определения искомым объемных активностей ДПР (Бк/м³) имеют вид

$$\begin{aligned} A_V^{Po-218} &= \frac{4,4}{\varepsilon\eta_F\nu} [N(1,4) - N(7,10)] , \\ A_V^{Pb-214} &= \frac{1,1}{\varepsilon\eta_F\nu} N(7,10), \\ A_V^{Bi-214} &= \frac{1}{\varepsilon\eta_F\nu} [2,2N(7,10) - 0,9N(1,4)]. \end{aligned} \quad (6.43)$$

Первоначальный метод Кузнецца для оперативного определения ДПР радона состоял в том, что воздух, содержащий радиоактивные аэрозоли, прокачивали через фильтр в течение 5 или 10 мин, а затем измеряли его активность при помощи полевого α -радиометра. При дальнейшем развитии метода Кузнецца в целях увеличения его чувствительности и уменьшения систематической погрешности за счет сдвига равновесия между ДПР было предложено увеличить время измерения активности фильтра. Было просчитано значительное число вариантов измерений, в которых варьировалось время прокачки, а также время начала и окончания измерений активности фильтра. Величина ЭРОА радона (Бк/м³) определяется по формуле

$$A_{ЭРОА}^{Rn} = \frac{3700N(t_0; T_1, T_2)}{\varepsilon\eta_F\nu \cdot K}, \quad (6.44)$$

где $N(t_0; T_1, T_2)$ - число импульсов, зарегистрированных α -детектором за интервал времени с T_1 по T_2 после окончания прокачки при времени прокачки t_0 . Значения коэффициента K для различных условий измерения приведены в табл. 6.5.

Относительный недостаток метода Кузнецца - большой интервал времени между прокачкой и измерением, хотя в отдельных ситуациях это является преимуществом (отбор проб в труднодоступных местах).

Таблица 6.5
Значения коэффициента пересчета K для метода Кузнеця

| Отбора пробы t_0 | Время, мин | | Коэффици- ент пере- счета K |
|-----------------------|------------------------------|---------------------------------|-------------------------------------|
| | Начала измерения T_1 | Окончания измерения T_2 | |
| 5 | 40 | 45 | 3700 |
| 5 | 40 | 50 | 7150 |
| 5 | 40 | 100 | 29200 |
| 5 | 60 | 65 | 2700 |
| 5 | 60 | 70 | 5200 |
| 5 | 60 | 120 | 20100 |
| 10 | 40 | 45 | 7150 |
| 10 | 40 | 50 | 13800 |
| 10 | 40 | 70 | 35500 |
| 10 | 40 | 100 | 55900 |
| 10 | 60 | 65 | 5200 |
| 10 | 60 | 70 | 9900 |
| 10 | 60 | 90 | 24900 |
| 10 | 60 | 120 | 38400 |

Глава. 7. РАДИОМЕТРИЧЕСКИЕ МЕТОДЫ МЕТРОЛОГИИ НЕЙТРОННОГО ИЗЛУЧЕНИЯ

Введение

В нейтронной физике и других областях, где используется нейтронное излучение, проводят измерения различных физических величин и определяют зависимости, характеризующие поля и источники нейтронов. Результаты измерений величин и зависимостей, получаемые различными экспериментаторами с помощью одинаковых или различных методов и технических средств, имеют ценность лишь в том случае, если согласованы друг с другом на уровне требуемой достоверности. Решение данной проблемы входит в компетенцию метрологии нейтронного излучения.

Как научная дисциплина метрология нейтронного излучения имеет двойственную природу: с одной стороны это один из разделов общей метрологии, с другой - отдельное направление нейтронной физики.

Развитие метрологии нейтронного излучения началось после зарождения новых направлений ядерной физики - нейтронной физики и её приложений. Пока нейтронные исследования не выходили за пределы национальных лабораторий (тридцатые - сороковые годы), национальные метрологические организации не занимались экономическими аспектами нейтронной физики. Но в последующий период нейтронная физика стала выходить из сферы теоретических и экспериментальных исследований в область практического использования. Появилась новая отрасль промышленности - ядерная энергетика, стало развиваться ядерное приборостроение. Постепенно основные представления нейтронной физики становились достоянием не только физиков, но и инженеров. Её методы стали широко применяться в различных областях науки, техники и промышленности.

В связи с этим возникла необходимость решения проблемы обеспечения согласуемости результатов измерений, выполняемых специалистами разных профессий и квалификаций. Такую задачу нельзя решить без привлечения метрологии. В настоящее время метрология нейтронного излучения представляет собой учение об измерении физических, свойственных области нейтронного излучения, или, подразумевая практические цели метрологии, - учение о методах и средствах обеспечения единообразия мер и согласуемости результатов нейтронных измерений.

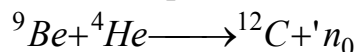
Метрологическая деятельность направлена также на то, чтобы обеспечить единую и корректную трактовку погрешностей результатов измерений всеми экспериментаторами. Соответствующие рекомендации по расчёту погрешностей включены в стандартные методики измерений и обработки результатов.

7.1. Источники нейтронов

Известны три основных типа нейтронных источников:

1. Радиоактивные источники нейтронов.
2. Нейтроны, получаемые с помощью ускорителей.
3. Нейтроны ядерных реакторов.

Радиоактивные источники нейтронов применяются давно - практически со времени открытия нейтрона, связанного с реакцией



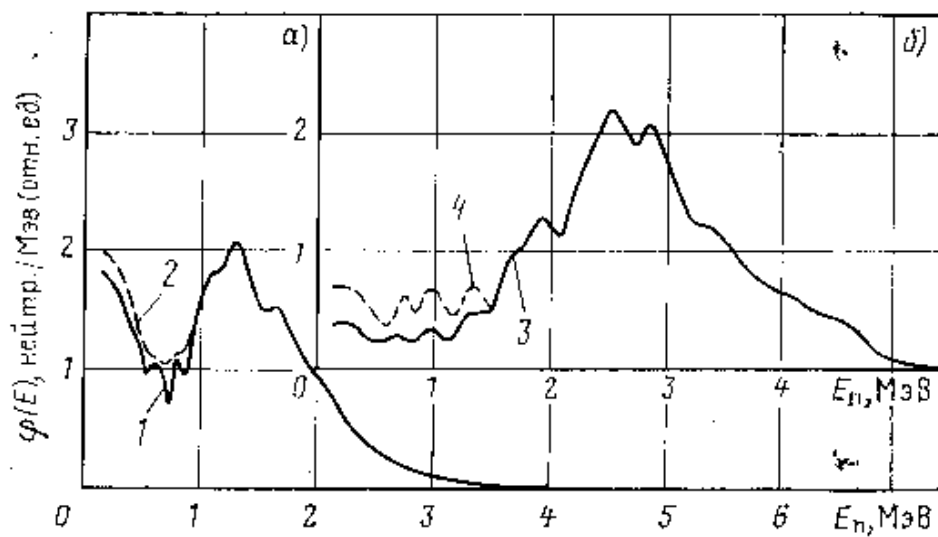
С тех пор для получения нейтронов широко используются источники, основанные на взаимодействии α -частиц того или другого радиоактивного вещества с легкими элементами - бериллием и бором. В таблице 1.1 приведены характеристики некоторых (α, n) - нейтронных источников. Спектры нейтронов имеют довольно сложный характер с преобладанием нейтронов высоких энергий.

Таблица 7.1

Характеристика некоторых (α, n) нейтронных источников

| Тип источника нейтронов | Период полураспада | Максим. энергия нейтр., Мэв | Выход нейтр., нейтр/с | Примечание |
|-------------------------------------|--------------------|-----------------------------|-------------------------|---|
| ${}^{239}\text{Pu-Be} (\alpha, n);$ | 24400 лет | 10,7 | $10^4 - 5 \cdot 10^7$ | Интерметаллическое соединение плутония с бериллием ИБН-1 - ИБН-12 |
| ${}^{210}\text{Po-Be} (\alpha, n);$ | 138,4 дней | 10,87 | $10^6 - 4,5 \cdot 10^8$ | Удельный выход $8 \cdot 10^6$ нейтр./с на 1Ки ${}^{210}\text{Po}$ |
| ${}^{210}\text{Po-B} (\alpha, n);$ | 138,4 дней | 6,0 | $10^6 - 10^7$ | Удельный выход $2 \cdot 10^5$ нейтр./с на 1Ки ${}^{210}\text{Po}$ |

Спектры нейтронных источников приведены на рис. 7.1 - 7.3.



Энергетические спектры нейтронов радионуклидных источников:
 а: 1 — $^{238}\text{Pu}-\text{LiF}$; 2 — $^{241}\text{Am}-\text{LiF}$; б: 3 — $^{238}\text{Pu}-\text{В}$; 4 — $^{241}\text{Am}-\text{В}$

Рис. 7.1. Энергетические спектры различных (α, n) источников

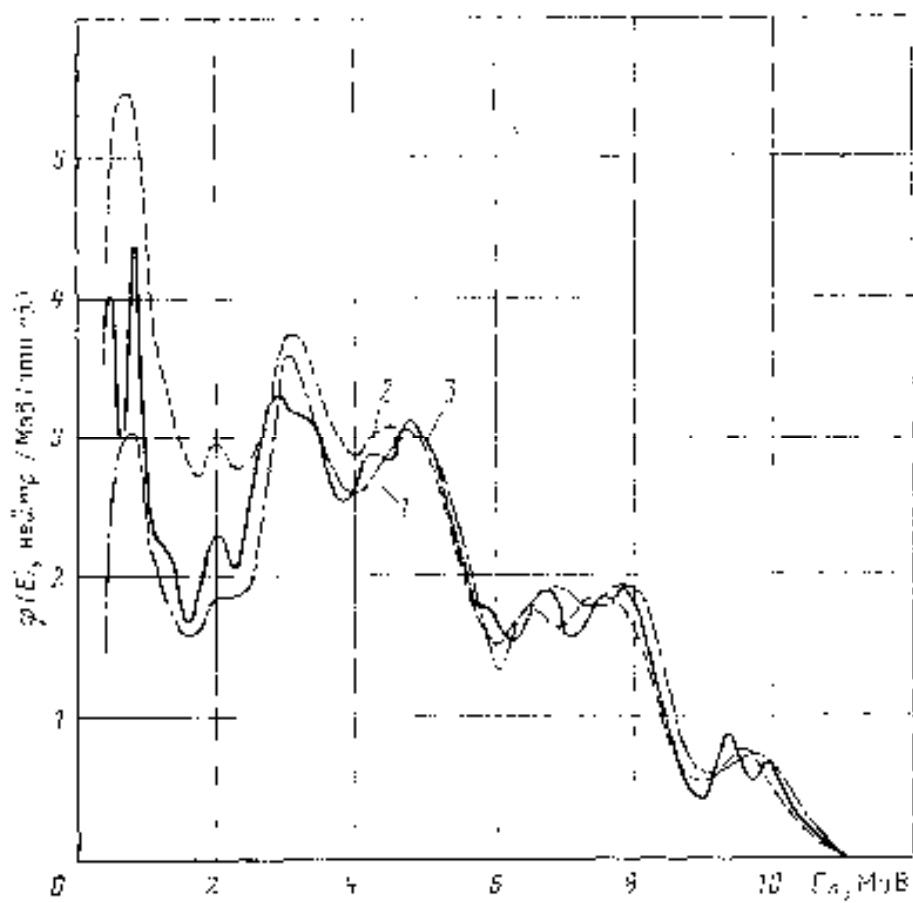


Рис. 7.2. Энергетические спектры Pu-Be источников

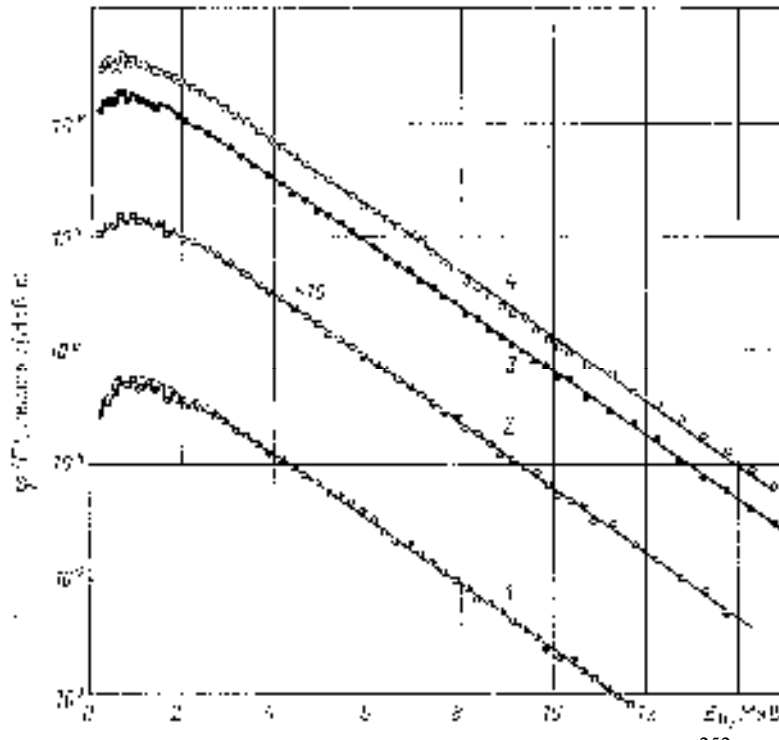


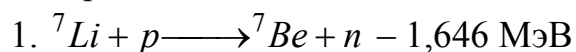
Рис. 7.3. Энергетические спектры источников ^{252}Cf

Для получения нейтронов могут использоваться фотонейтронные реакции (γ, n). Для возникновения такой реакции необходимо, чтобы энергия γ -квантов превышала энергию связи в ядре. В качестве мишеней в (γ, n) - нейтронных источниках обычно используют бериллий и дейтерий, у которых порог фотонейтронной реакции составляет соответственно 1,68 и 2,23 МэВ. Такие источники дают нейтроны невысоких энергий на фоне интенсивного жёсткого γ -излучения, что ограничивает возможность их использования.

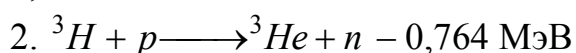
В качестве радиоактивных источников нейтронов находят широкое применение спонтанно делящиеся материалы. Так, например, серийно выпускаются источники из ^{252}Cf (ИНК-1 + ИНК-7) с выходом нейтронов от 10^6 до 10^9 нейтр./с.

С помощью ускорителей заряженных частиц можно получать интенсивные пучки нейтронов практически с любой энергией и с хорошим разрешением по энергиям.

Моноэнергетические нейтроны могут быть получены с использованием ускоренных дейтронов и протонов по реакциям (d, n) и (p, n) на мишенях из легких материалов:



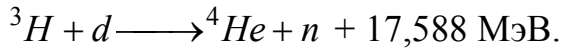
Граничная энергия для этой реакции равна 1,881 МэВ. Энергия нейтрона зависит от энергии протона. Так при энергии протона 1,881 МэВ энергия нейтрона, излучаемого в направлении вперед, составляет 30 кэВ, а при энергии протона 2,378 МэВ - 650 кэВ.



Энергия порога этой реакции составляет 1,019 МэВ.

Энергия нейтронов, излученных вперед, соответствующая пороговой энергии протонов, равна 68,7 кэВ (нейтроны, излученные в другом направлении, имеют другую энергию, величина которой поддается строгому расчёту). В качестве мишени используют титан и цирконий, насыщенные тритием, или так называемые газовые мишени, представляющие собой камеру, заполненную газообразным тритием.

3. При облучении дейтонами тритиевой мишени возникает ядерная реакция, идущая не с поглощением, а с выделением тепла - экзоэнергетическая:



Этой реакцией пользуются обычно для получения высокоэнергетических нейтронов. Для дейтонов с энергией меньше 400 кэВ поток нейтронов получается практически изотропным и энергия получающихся моноэнергетических нейтронов составляет примерно 14 МэВ. При увеличении энергии дейтонов до 3 МэВ энергия нейтронов возрастает до 20 МэВ.

4. Для получения нейтронов может быть использовано тормозное излучение ускорителей электронов. В этом случае используется (γ, n) - реакция.

Наиболее распространенным и мощным источником нейтронов является реактор.

В ядерных реакторах в качестве делящегося материала обычно используют ${}^{235}\text{U}$, ${}^{238}\text{U}$ и ${}^{239}\text{Pu}$. При поглощении нейтрона образуется ядро, распадающееся в течении времени $\sim 10^{-14}$ с на два осколка, массы которых чаще всего различны и распределены в интервале $76 \leq A \leq 160$. Образовавшиеся в результате деления осколки имеют большую кинетическую энергию и находятся в сильно возбужденном состоянии: средняя энергия возбуждения составляет для лёгкого осколка ~ 11 МэВ, для тяжелого ~ 9 МэВ. Основная часть возбуждения снимается в результате испускания нейтронов и мгновенных γ -квантов. Процесс деления - экзотермическая реакция и полная энергия, освобождающаяся в результате одного акта деления, составляет около 200 МэВ.

В таблице 7.2 приведён выход вторичных нейтронов в зависимости от энергии первичного нейтрона и делящегося материала.

Спектр нейтронов деления ${}^{235}\text{U}$ часто описывают формулой Ватта:

$$S(E)dE = \sqrt{\frac{2}{\pi e}} e^{-E} \cdot Sh\sqrt{2E} dE \quad (7.1)$$

или используют более простую формулу

$$S(E)dE = 0,77\sqrt{E} \cdot e^{-0,776E} dE \quad (7.2)$$

В области высоких энергий нейтронов от 4 до 14 МэВ спектр можно представить в виде экспоненты

$$S(E)dE = 1,75e^{-0,776E} dE \quad (7.3)$$

Таблица 7.2

Число вторичных нейтронов для различных делящихся ядер.

| Ядро-мишень | Энергия нейтронов вызывающих деление МэВ, | Число нейтронов, возникающих в одном акте деления |
|----------------|---|---|
| Уран - 233 | 0,08 | $3,58 \pm 0,06$ |
| | 1,8 | $2,71 \pm 0,04$ |
| | 14,0 | $4,4 \pm 0,2$ |
| Уран - 235 | 0,08 | $2,43 \pm 0,02$ |
| | 1,8 | $2,74 \pm 0,05$ |
| | 14,0 | $4,4 \pm 0,2$ |
| Уран - 238 | 1,5 | $2,65 \pm 0,07$ |
| | 14,0 | $4,4 \pm 0,2$ |
| Плутоний - 239 | 0,08 | $3,05 \pm 0,08$ |
| | 1,8 | $3,14 \pm 0,09$ |
| | 14,0 | $4,4 \pm 0,2$ |

Ошибки при использовании этих формул не превышают 15%.

Спектры нейтронов деления ^{233}U и ^{239}Pu существенно не отличаются от спектра ^{235}U .

Появляющиеся в результате деления осколки имеют избыток нейтронов, β -активны и в некоторых случаях в ходе их радиоактивного распада излучаются так называемые запаздывающие нейтроны. Их выход относительно мал, поэтому они составляют незначительную часть общего числа нейтронов, образующихся в активной зоне. Подробно нейтронные спектры реактора будут рассмотрены в последующих разделах.

7.2. Взаимодействие нейтронов с веществом

Методы регистрации нейтронов основаны на процессах их взаимодействия с веществом. Нейтроны практически не имеют электрического заряда, поэтому электромагнитное взаимодействие их с электронами и с кулоновским полем ядра настолько мало, что может не учитываться. Нейтроны с ядром взаимодействуют тогда, когда нейтрон проникает в ядро или проходит так близко от него, что попадает в сферу действия ядерных сил.

Основными процессами, происходящими при взаимодействии нейтронов с веществом являются:

- 1) упругое рассеяние (n, n);
- 2) неупругое рассеяние (n, n' γ);
- 3) радиационный захват (n, γ);
- 4) реакция с вылетом заряженных частиц (n, α), (n, p) и др. ;
- 5) деление ядер (n, f);

б) реакция с вылетом нескольких нейтронов и заряженных частиц ($n, 2n$); ($n, 3n$) и др.

Упругое рассеяние (n, n) - нейтронов энергетически возможно при любой энергии нейтронов и почти на всех ядрах. При упругом расстоянии на легких ядрах, так как масса нейтрона соизмерима с массой ядра, изменение энергии нейтрона, практически равной энергии отдачи ядра, оказывается вполне заметным. При упругом рассеянии начальная кинетическая энергия нейтрона распределяется между нейтроном и ядром. Ядро остается возбужденным. Чем меньше масса ядра, тем большую кинетическую энергию оно может получить. Изменение энергии нейтрона при упругом рассеянии однозначно связано с углом рассеяния Q . У нейтрона изменение энергии при упругом соударении тем больше, чем ближе его масса к массе рассеивающего ядра и чем больше угол рассеяния Q . При рассеянии нейтрона на ядре водорода - протоне ($m_p = m_n$) на угол, близкий 90° , нейтрон теряет почти всю энергию. При рассеянии нейтронов на тяжелых ядрах потеря ими энергии невелика, и можно приближенно считать, что упругое рассеяние нейтронов происходит без потери энергии.

Неупругое рассеяние ($n, n'\gamma$) энергетически возможно лишь для быстрых нейтронов. Оно является частным случаем захвата нейтрона ядром. Процесс неупругого рассеяния ($n, n'\gamma$) возможен для нейтронов с энергией, превышающей энергию первого возбужденного уровня. Энергия испущенного нейтрона обычно бывает меньше энергии падающего нейтрона, так как после испускания нейтрона конечное ядро может остаться в возбужденном состоянии и испускает γ -кванты.

Первые возбужденные уровни тяжёлых ядер имеют, как правило, энергию не более 10 кэВ, а лёгких ядер - 0,5-5 МэВ, следовательно, энергетический порог неупругого рассеяния составляет для тяжёлых ядер 100 кэВ, а для лёгких 0,5 - 5 МэВ. Неупругое рассеяние для быстрых нейтронов более вероятно, чем упругое. При рассеянии на ядрах водорода, неупругого рассеяния не происходит при любой энергии нейтронов, так как у протона нет возбуждённых состояний.

Радиационный захват (n, γ) является наиболее распространенной реакцией, так как под действием тепловых нейтронов он происходит на ядрах практически всех элементов. Некоторые ядра захватывают нейтроны при определенных энергиях надтепловых нейтронов - происходит так называемый резонансный захват. В некоторых реакциях (n, γ) конечное ядро представляет собой стабильный изотоп облучаемого ядра (например, $^{113}\text{Cd} (n, \gamma) ^{114}\text{Cd}$). Но у большинства ядер радиационный захват приводит к образованию нестабильного (радиоактивного) конечного ядра. Гамма-кванты, испускаемые при захвате нейтрона, имеют энергию в несколько МэВ. Реакция радиационного захвата нейтрона широко используется в активационном методе измерения нейтронных полей и будет подробно рассмотрена в последующих разделах данной работы.

Реакции с вылетом заряженных частиц (n, p), (n, d), (n, α) и т.д. Так как заряженные частицы перед вылетом из ядер должны преодолеть кулоновский барьер

ер, то эти реакции наиболее вероятны для лёгких ядер и быстрых нейтронов, сообщающих энергию, достаточную для преодоления этого барьера заряженной частицей. Однако реакции (n, p) и (n, d) могут быть не только эндотермическими, но и экзотермическими, характеризующимися выделением энергии. Примером таких реакций, протекающих на тепловых нейтронах, являются ${}^6\text{Li}(n, \alpha)$, ${}^{10}\text{B}(n, \alpha)$, ${}^{13}\text{N}(n, p)$. Первые две реакции используются для детектирования нейтронов, реакция на ядрах азота протекает в тканях человеческого тела при поглощении тепловых нейтронов и тем важна для нас.

Деление ядер (n, f) . При делении ядер составное ядро делится на два и более осколков с испусканием одного или нескольких нейтронов. Захват нейтрона, сопровождаемый делением, наблюдается практически только для очень тяжелых ядер, атомные ядра с массовым числом $A < 220$ практически не делятся. Некоторые ядра делятся под влиянием тепловых нейтронов (${}^{235}\text{U}$, ${}^{233}\text{U}$, ${}^{239}\text{Pu}$ и др.), другие - только под действием быстрых нейтронов (${}^{238}\text{U}$, ${}^{232}\text{Th}$). Процесс деления тяжелых ядер сопровождается выделением большого количества энергии (до 150 МэВ), которой обладают полученные в результате распада осколки деления. Помимо осколков деления происходит испускание нейтронов, которые получаются вследствие того, что осколки деления имеют избыток нейтронов и находятся в возбужденном состоянии. Практически тот факт, что на акт деления испускается больше одного нейтрона, обусловил возможность цепной реакции, а следовательно, и развитие ядерной энергетики вообще.

Реакции с вылетом нескольких нейтронов и заряженных частиц имеют место при сравнительно большой энергии нейтронов (20 МэВ и выше).

Для удобства описания взаимодействия нейтронов с частицами и ядрами вещества введено понятие сечение взаимодействия, обозначаемое σ . Чтобы понять, что такое σ , рассмотрим следующий пример.

Предположим, что коллимированный пучок нейтронов ϑ (ϑ - число нейтронов, пересекающих за 1 с 1 кв. см поверхности, расположенной перпендикулярно пучку) падает на вещество, содержащее идентичных атомных ядер в 1 куб. см. Число "событий" (число актов рассеяния или поглощения) за 1 с в 1 куб. см равно

$$\psi = \vartheta N \sigma \quad (7.4)$$

Предполагается, что пучок нейтронов пронизывает образец практически без ослабления. Коэффициент пропорциональности называется сечением взаимодействия. Согласно формуле (1.4), величина σ имеет размерность кв. см. В качестве меры сечения используется единица, называемая барном:

$$1 \text{ барн} = 10^{-24} \text{ см}^2.$$

Сечение рассеяния и поглощения (σ_s и σ_a соответственно) обычно отличаются друг от друга; каждое из этих сечений состоит из парциальных сечений, таких, как упругое и неупругое рассеяние, радиационный захват, деление и т. д. Сумма парциальных сечений называется полным сечением:

$$\sigma_t = \sigma_s + \sigma_a$$

Иногда используется величина $\sigma N = \Sigma$, называемая макроскопическим сечением. Её можно рассматривать как вероятность того, что нейтрон испытывает акт рассеяния или будет поглощен на отрезке длиной 1 см, размерность этой величины - $[\text{см}^{-1}]$.

7.3 Методы измерения основных характеристик нейтронного поля

Основными характеристиками нейтронного поля, необходимыми для расчёта эффектов, возникающих под действием нейтронов в облучаемых объектах, и для управления работой реакторов, являются энергетическое распределение (спектр) нейтронов и плотность потока нейтронов. В соответствии с рекомендациями МКРЕ плотность нейтронного потока можно называть скоростью переноса. Кроме плотности потока используют величину, называемую флюенсом нейтронов.

Если плотность потока нейтронов обозначить φ , а число нейтронов, входящих за время Δt в сферу с поперечным сечением ΔS - Δn , то

$$\varphi = \Delta n / (\Delta S * \Delta t) \quad (7.5)$$

При использовании тех же обозначений флюенс нейтронов может быть определён следующим отношением:

$$F = \Delta n / \Delta S = \varphi \Delta t \quad (7.6)$$

Для измерения характеристик нейтронного поля разработано большое число различных средств и методов. По принципу действия детекторы можно разделить на следующие группы:

1. Ионизационные камеры и пропорциональные счётчики.
2. Радиационные (эмиссионные) элементы - зарядовые детекторы.
3. Детекторы, основанные на тепловом эффекте.
4. Полупроводниковые детекторы.
5. Активационные детекторы.

Хотя задачей настоящего методического пособия является ознакомление студентов с методами активационного детектирования нейтронов, кратко рассмотрим другие типы детекторов.

7.3.1. Ионизационные камеры и пропорциональные счётчики

Для исследования характеристик нейтронного поля применяют импульсные и токовые ионизационные камеры, нейтроночувствительные элементы которых содержат В, Не или делящиеся элементы (нуклиды ^{235}U , ^{238}U , ^{239}Pu , ^{237}Np и др.). Чтобы камеры удобно было размещать внутри реакторных каналов, они должны быть по возможности миниатюрными (диаметр 1-10, длина 10-30 мм).

Борные камеры применяют для относительно невысоких плотностей потока - до 10^{14} нейтр./м²*с, т.к. они довольно чувствительны к γ -излучению. (Предельный γ -фон составляет 0,4 Р/с). Оценку плотности потока в различных участках спектра нейтронов можно осуществить, применяя камеры деления с элементами, имеющими различную зависимость сечения деления от энергии нейтронов. Для уменьшения чувствительности к тепловым нейтронам такие камеры окружают чехлами из материалов, интенсивно поглощающих тепловые нейтроны, - кадмия, гадолиния, бора.

Для компенсации тока от фона γ -излучения реактора, значение которого может достигать 5-20% тока, обусловленного нейтронами, используют метод вычитания фонового тока с помощью камер, электроды которых не содержат нейтроночувствительных элементов.

Достоинство камер: широкий диапазон измерений (от 10^7 до 10^{18} нейтр/м²с). Радиационный ресурс камеры составляет 10^{24} нейтр/м².

Недостатки ионизационных камер: значительное выгорание нейтроночувствительного элемента, высокая чувствительность к γ -компоненте реакторного излучения.

Большую чувствительность к тепловым нейтронам имеют пропорциональные счётчики, заполненные трёхфтористым бором (BF₃), обогащённые изотопом ¹⁰B. Эти счётчики дают возможность регистрировать нейтроны при сопутствующем γ -излучении с мощностью экспозиционной дозы до 0,8 Р/с. Но их нельзя надёжно использовать для внутриреакторных измерений вследствие чувствительности к радиационным воздействиям.

При невысоких полях γ -излучения водородные или метановые пропорциональные счётчики могут быть использованы для спектрометрии нейтронов. Такие счётчики позволяют разделять сигналы от γ -квантов и нейтронов по форме импульса и определять спектры в диапазоне 0,02-5 МэВ.

7.3.2 Зарядовые детекторы

Зарядовые детекторы (или радиационные нейтронные элементы) используют принцип прямого преобразования ядерной энергии в электрический ток:

а) в детекторах прямой зарядки (ДПЗ) ток обусловлен непосредственно β -излучением радионуклидов, образующихся в эмиттере под действием нейтронов;

б) в нейтронных детекторах комптоновских (ДНК) ток обусловлен вторичными электронами, возбуждаемыми в эмиттере под действием γ -излучения, испускаемого при захвате нейтрона в материале эмиттера.

В стационарном нейтронном поле через время больше пяти периодов полураспада радионуклидов, образующихся в эмиттере, ток детектора (ДПЗ) пропорционален плотности потока нейтронов. В качестве материала эмиттера используют вещество, при облучении которого нейтронами образуются короткоживущие β -радионуклиды (например Rh, Ag).

Использование ДПЗ ограничено низкоэнергетической частью нейтронного спектра (до 10 эВ), т.к. к нейтронам больших энергий чувствительность детектора мала. Помимо этого к недостаткам ДПЗ можно отнести их инертность (5 периодов полураспада образующегося радионуклида). Ресурс ДПЗ составляет 10^{26} нейтр/м².

В отличие от ДПЗ другой тип зарядовых детекторов - НДК - является безинерционным, но чувствительность его примерно в 2-5 раз ниже, чем чувствитель-

ность ДПЗ таких же размеров. На показания этих детекторов большое влияние оказывает γ - излучение реактора.

7.3.3. Детекторы, основанные на тепловом эффекте.

К детекторам, основанным на тепловом эффекте, относятся термобатареи, которые иногда также называют нейтронными калориметрическими детекторами. Радиационная термобатарея (РТБ) представляет собой термопару, на "горячий" спай которой нанесен радиатор, содержащий нейтроночувствительный элемент. Разогрев спая происходит за счёт тепла, выделяющегося в радиаторе при торможении заряженных частиц, возникающих под действием нейтронов. При этом ЭДС, наводимая в термопаре, пропорциональна плотности потока нейтронов. В качестве радиатора используют Mn, В, Li, делящиеся элементы. Для уменьшения чувствительности РТБ к γ - излучению реактора и изменению температуры окружающей среды используют несколько соответствующим образом соединённых термопар (термобатарей). Радиатор наносят только на половину из них ("горячий" спай). на вторую половину термопар ("холодные" спаи) наносят вещество, имеющее такую же чувствительность к "стороннему" теплу, как и первая половина (например, если радиатор содержит ^{10}B , то для покрытия используют В, обогащённый ^{11}B).

Достоинство РТБ - простота и надёжность измерительных схем. Недостатки: нелинейность показаний при плотности потока нейтронов свыше 10^{17} нейтр/м²с и небольшой набор материалов для радиатора, вследствие чего область применения РТБ ограничена измерениями плотности потока нейтронов тепловых энергий.

7.3.4 Полупроводниковые детекторы нейтронов

Полупроводниковые нейтронные детекторы (ППДН) с радиаторами из В, Li и делящихся элементов применяют для внутриреакторных измерений только при работе реакторов на малой мощности. Это объясняется невысоким радиационным ресурсом кремниевых ППД (10^{17} нейтр/м²).

Высокое энергетическое разрешение ППД позволяет проводить измерения спектра нейтронов, используя мишени из лёгких ядер (Li, В) или наборы мишеней из делящихся нуклидов (^{235}U , ^{239}Pu , ^{237}Np и др.).

7.3.5 Активационный метод измерения параметров нейтронного поля.

В качестве основного метода нейтронных измерений на ядерных физических установках принят нейтронно-активационный метод как наиболее полно удовлетворяющий специфике реакторных измерений. Активационные детекторы имеют следующие достоинства:

1. Возможность измерения спектра, плотности потока и флюенса нейтронов по всем энергетическом инервале, в диапазоне плотности потока от 10^7 до 10^{19} нейтр/м²с.
2. Возможность воспроизведения и сохранения основных параметров детекторов в различных условиях их применения при многократном использовании.
3. Высокая эффективность регистрации нейтронов (по крайней мере для нейтронов с энергией до нескольких килоэлектронвольт) при небольших размерах самого детектора, что позволяет проводить измерения без искажения нейтронного поля.
4. Низкая чувствительность к другим видам излучений реактора.
5. Способность интегрировать информацию, что позволяет применять их, как в статических, так и в импульсных полях (в том числе при оценке доз в аварийной ситуации).

Активационные детекторы изготавливают в виде фольг, проволок, таблеток, размеры которых определяются условиями эксперимента.

Все измерения с помощью активационных детекторов основаны на определении активности, наведённой нейтронами в веществе детектора. Если предположить, что толщина детектора мала и захватывается малая доля падающих на него нейтронов, и что лишь незначительная часть ядер становится радиоактивной, то при статическом режиме облучения в детекторе, помещённом в ней-

тронное поле, образуется в единицу времени $N = N_{\text{я}} \int_0^{\infty} \varphi(E) \sigma(E) dE$ ядер актив-

ного изотопа.

В этом выражении $\sigma(E)$ - сечение реакции образования радионуклида, $N_{\text{я}}$ - число ядер активируемого изотопа в детекторе. Одновременно с образованием радионуклидов будет происходить и их радиоактивный распад. Скорость изменения числа ядер за счёт распада радионуклида равна λN , где λ - постоянная распада. Полная скорость изменения числа ядер к моменту облучения t может быть представлена как сумма скоростей распада и образования активных ядер:

$$\frac{dN(t)}{dt} = \lambda N(t) + N_{\text{я}} \int_0^{\infty} \varphi(E) \sigma(E) dE \quad (7.7)$$

Решением этого уравнения будет выражение

$$N(t) = \frac{N_{\text{я}}}{\lambda} [1 - \exp(-\lambda t)] \int_0^{\infty} \varphi(E) \sigma(E) dE \quad (7.8)$$

Активность образующегося радионуклида

$$A = N_{\text{я}} [1 - \exp(-\lambda t)] \int_0^{\infty} \varphi(E) \sigma(E) dE \quad (7.9)$$

Величину $R = \int_0^{\infty} \varphi(E) \sigma(E) dE$ (7.10) называют скоростью реакции или активационным интегралом. Её можно определить как число актов данного взаимодействия, происходящих в образце за одну секунду в расчёте на одно ядро изотопа мишени. В активационном методе скорость реакции R является основной экспериментальной величиной и определяют её, исходя из активности, наведённой в образце:

$$R = \frac{A(t_e) \cdot e^{\lambda t_e}}{N_{\text{я}}(1 - e^{-\lambda t})}, \quad (7.11)$$

где $A(t_B)$ - активность образца, измеренная спустя время t_B после окончания облучения.

Если радионуклид короткоживущий, то при расчёте скорости реакции следует учесть его распад за время измерения $t_{\text{изм}}$:

$$R = \frac{A(t_B) e^{\lambda t_B}}{N_{\text{я}}(1 - e^{-\lambda t})} \cdot \frac{\lambda t_{\text{изм}}}{1 - e^{-\lambda t_{\text{изм}}}}. \quad (7.12)$$

В таблице 7.3 приведены сравнительные характеристики некоторых детекторов.

Таблица 7.3

Сравнительная характеристика детекторов нейтронов

| Характеристика | Ионизационная камера | Камера деления | Зарядовые детекторы | Радиационная термобатарея | Активационные детекторы |
|--|---|---|---|---|---|
| Чувствительность быстр. тепл. | - 10^{-11} имп $\frac{H}{(M^2 \cdot c)}$ | 10^{-3} 10^{-2} имп $\frac{H}{(M^2 \cdot c)}$ | 10^{-16} 10^{-19} A $\frac{A}{H/(M^2 \cdot c)}$ | $3 \cdot 10^{-16}$ 10^{-18} A $\frac{A}{H/(M^2 \cdot c)}$ | 10^{-11} 10^{-8} Бк $\frac{H}{(M^2 \cdot c)}$ |
| T ⁰ среды | до 250 | до 1000 | до 900 | до 450 | до 1400 |
| Диапазон плотности потока нейтронов, H/M ² *с | $10^{10} - 10^{14}$ | $10^8 - 10^{17}$ | $10^{12} - 10^{16}$ | $10^{13} - 10^{18}$ | $10^7 - 10^{19}$ |
| Необходимость компенсации γ -фона | есть | нет | есть | есть | нет |
| Время измерения | секунды | секунды | ДПЗ: 3 - 10 с НДК: доли секунд | до 40 с | несколько часов |
| Возмущение нейтронного поля | есть | есть | есть | мало | мало |
| Трудности реализации | Отсутствие радиационностойких кабелей, изоляторов | | | | |
| Радиационная стойкость до флюенса, H/M ² | 10^{23} | 10^{24} | 10^{25} | 10^{24} | - 10^{27} |

7.4. Активационные детекторы

Активационные детекторы по своему назначению разделяются на три группы:

1. Детекторы тепловых нейтронов для измерения параметров тепловой компоненты нейтронного поля. Сечение активации в этой области для большинства элементов изменяется обратно пропорционально скорости нейтронов (закон $1/v$). Немногие элементы, сечения которых имеют резонансы в этой области, применяют для измерения спектральных параметров - температуры тепловых нейтронов или так называемых "спектральных индексов".

2. Резонансные детекторы для измерения плотности потока и спектра промежуточных нейтронов. В этой области энергии нейтронов характерно наличие сильных резонансов в сечениях захвата нейтронов. Значительная часть полной активации детектора обусловлена нейтронами с энергией, соответствующей резонансам. Использование детекторов с резонансными сечениями при различных энергиях позволяет определить спектр нейтронов и плотность потока в интервале от 0,5 эВ до нескольких кэВ.

3. Пороговые детекторы для измерения потоков и спектров быстрых нейтронов. В них используются реакции типа (n, f) , (n, p) , (n, α) , $(n, n'\gamma)$, вызываемые быстрыми нейтронами. Сечение этих реакций для большинства элементов составляет доли барна. Поэтому для изготовления пороговых детекторов можно использовать только высокочистые материалы, т.к. даже небольшие примеси элементов, имеющих большое сечение активации тепловыми или резонансными нейтронами, усложняет измерения.

7.4.1. $1/v$ - детекторы

Для элементов, сечение взаимодействия которых подчиняется так называемому $1/v$ - закону, можно написать следующее выражение для $\sigma(v)$:

$$\sigma(v) = \sigma_0 v_0 / v \quad (7.13)$$

где σ_0 - сечение реакции для нейтронов, у которых $v_0=2200$ м/с, $E_0=0,025$ эВ.

Важнейшим свойством $1/v$ - детекторов является независимость скорости реакции от энергетического распределения нейтронов. Выражение (2.6), связывающее скорость реакции с плотностью потока нейтронов ϕ и сечением взаимодействия нейтронов σ , можно записать по-иному

$$R = \int_0^{\infty} n(v) v \cdot \sigma(v) dv \quad (7.14)$$

где $n(v)$ - плотность нейтронов, нейтр/см³; $n(v)v=\phi(v)$ - плотность потока нейтронов, нейтр./см²·с.

Учитывая (7.13), получим следующую зависимость

$$R = \int_0^{\infty} \sigma_0 v_0 n(v) dv = (nv_0) \sigma_0 \quad (7.15)$$

где $n = \int_0^{\infty} n(v) dv$ - общая плотность нейтронов.

Если поперечное сечение взаимодействия нейтронов с веществом изменяется по закону $1/v$, то увеличение скорости нейтронов точно компенсируется снижением поперечного сечения, а, следовательно скорость реакции R и активность детектора A оказываются пропорциональными полной плотности нейтронов, независимо от их спектрального распределения.

Чаще всего в качестве активационных детекторов $1/v$ - типа используют изотопы ^{164}Dy , ^{55}Mn , ^{63}Cu , ^{51}V . Их характеристики даны в таблице 7.4.

Таблица 7.4

Характеристика активационных $1/v$ - детекторов.

| Реакция | Распостр (%) | $T_{1/2}$ | σ_0 , барн | E_γ , МэВ (%) | E_β МэВ (%) |
|---|--------------|-----------|-------------------|----------------------|-------------------|
| $^{51}\text{V}(n, \gamma)^{52}\text{V}$ | 99,76 | 3,76 мин | $4,9 \pm 0,8$ | - | 2,53(100) |
| $^{55}\text{Mn}(n, \gamma)^{56}\text{Mn}$ | 100 | 2,58 ч | $13,3 \pm 0,1$ | 0,847(99) | 0,75(16) |
| | | | | 1,011(29) | 1,04(30) |
| | | | | 2,110(15) | 2,86(58) |
| $^{59}\text{Co}(n, \gamma)^{60}\text{Co}$ | 100 | 5,27 года | $37,3 \pm 0,2$ | 1,173(99,87) | 0,134(99) |
| | | | | 1,332(99,97) | |
| $^{63}\text{Cu}(n, \gamma)^{64}\text{Cu}$ | 69,1 | 12,8 ч | $4,5 \pm 0,1$ | 0,511(38) | 0,57(38) |
| | | | | | 0,65(19) |
| $^{197}\text{Au}(n, \gamma)^{198}\text{Au}$ | 100 | 64,8 ч | $98,8 \pm 0,3$ | 0,41(99) | 0,96(98,6) |

^{54}Mn и ^{63}Cu имеют удобные периоды полураспада и довольно большие сечения взаимодействия, что позволяет определить плотность потока тепловых нейтронов, начиная от $10^9 - 10^{10}$ нейтр./с·см². соответственно. Но следует иметь в виду, что в жестком нейтронном спектре заметный вклад в активность марганца и меди вносит захват нейтронов резонансных энергий. Основной резонансный уровень для ^{55}Mn наблюдается при энергии 337 эВ, для ^{63}Cu - при энергии 578 эВ. То есть $1/v$ - часть сечений наблюдается только для этих энергий. Марганец на практике часто используется в виде марганцевоникелевых фольг, содержащих около 90 вес. % марганца. При захвате нейтрона изотопом ^{64}Ni образуется побочная активность, которая по чисто случайному совпадению имеет такой же период полураспада, как и ^{56}Mn . Однако она дает вклад, равный всего 0,01 % по отношению к основной активности. Марганцевоникелевые фольги весьма прочны, и их можно изготавливать толщиной до 6 мг/см². Из меди можно изготавливать фольги толщиной до 5 мг/см². Широкому применению ванадиевых детекторов препятствует быстрый спад активности ^{52}V .

В интервале тепловых энергий золото является одним из наиболее характерных $1/v$ - детекторов, но наличие доминирующего резонансного пика при 469 эВ требует для него разделения излучений, наведённых тепловыми и надтепловыми нейтронами, о чем будет рассказано дальше. Ядерно-физические характеристики золота хорошо изучены, а схема распада ^{198}Au позволяет надёжно детектировать β и γ - излучение. Из золота относительно легко можно изготовить фольгу почти "нулевой" толщины, что позволяет его легко использовать в качестве стандартного детектора в тепловой области энергии нейтронов.

7.4.2. Резонансные детекторы

Резонансные детекторы используют для измерения спектра нейтронов в надтепловой (называемой также эпитепловой, промежуточной) области энергий нейтронов. Поэтому области от 0,4 эВ до 30 кэВ называют иногда областью резонансных нейтронов.

Измерение потоков надтепловых нейтронов происходит обычно на фоне тепловых нейтронов и наоборот. Чтобы отделить эффект, вызванный надтепловыми нейтронами, от аналогичного эффекта, производимого тепловыми нейтронами, следует использовать какой-либо сильный поглотитель тепловых нейтронов. Действительно, если иметь поглотитель, избирательно поглощающий только тепловые нейтроны, то, произведя два измерения: одно с поглотителем, а другое без него, можно отделить эффект тепловых нейтронов от надтепловых.

В настоящее время в качестве поглотителя принято использовать ^{113}Cd из-за большого сечения в области тепловых энергий, причём вблизи тепловой области отсутствуют резонансы в сечении. Величина граничной кадмиевой энергии зависит от толщины кадмиевого экрана и в диапазоне толщин 0,2 - 1,0 мм меняется от 0,44 до 0,72 эВ (для изотропного источника нейтронов).

Резонансные детекторы имеют либо доминирующие резонансные пики при энергиях не превышающих 350 эВ, либо менее ярко выраженные резонансы, соответствующие более высоким энергетическим уровням.

Следует отметить, что один и тот же активационный детектор в области тепловых энергий может вести себя как $1/v$ -детектор, а в области надтепловых энергий как детектор резонансный (например, золото, марганец и др.). Активационный детектор облучают в кадмиевом чехле (экране) и без кадмия. В детекторе, защищённом кадмиевым экраном, активность обусловлена только надтепловыми нейтронами.

Одним из наиболее эффективных резонансных детекторов является ^{115}In . Доля активности, обусловленная его основным резонансом при энергии 1,46 эВ, достигает 96%. Большое резонансное сечение и относительно малый период полураспада позволяют применять индий для измерений малых значений плотности потока надтепловых нейтронов. Золото широко используется в качестве эталонного резонансного детектора. Для тонкой золотой фольги доля активности,

обусловленная доминирующим резонансным уровнем при энергии 4,9 эВ, достигает 95%.

Энергия основного резонансного уровня ^{186}W составляет 18,8 эВ, а доля вклада резонанса в процесс активации достигает 98%. Активационная способность этого изотопа значительно ниже, чем индия и золота. С его помощью обычно можно измерять плотность потока надтепловых нейтронов, начиная с 10^9 нейтр./с·м².

При более высоких энергиях нейтронов имеют резонансы следующие изотопы: ^{139}La - энергия основного резонанса 73,5 эВ, ^{55}Mn - 337 эВ, ^{63}Cu - 578 эВ.

Важной характеристикой резонансных детекторов, определяющей поперечное сечение захвата и активации, является так называемый резонансный интеграл I . При этом рассматривают три процесса поглощения нейтронов детектором: $1/v$ - поглощение, резонансное поглощение при доминирующем резонансе и поглощение при последующих резонансных уровнях:

$$I = \int_{E_{Cd}}^{\infty} \sigma(E) \frac{dE}{E} = \int_{E_{Cd}}^{\infty} \sigma_{1/v}(E) \frac{dE}{E} + \int_{E_{Cd}}^{E_1} \sigma_r(E) \frac{dE}{E} + \int_{E_1}^{\infty} \sigma_r(E) \frac{dE}{E} = \quad (7.16)$$

$$= I_{1/v} + I_{r0} + I'$$

где E_1 - верхняя граница доминирующего резонанса, E_{Cd} - граничная кадмиевая энергия. В качестве резонансных детекторов обычно используют детекторы, у которых $I_{E_{r0}} \ll I_{1/v} + I'$.

Основные характеристики резонансных детекторов приведены в таблице 7.5.

7.4.3. Пороговые детекторы

Один из основных экспериментальных методов оценки потоков и спектров нейтронов в реакторе - метод пороговых детекторов.

Пороговых нейтронных реакций довольно много. К ним относятся, во-первых, нейтронные реакции образования метастабильного состояния при неупругом рассеянии. Вторым типом пороговых реакций являются нейтронные реакции с вылетом заряженных частиц (протонов и α -частиц). Эти реакции могут быть зарегистрированы либо по испускаемым заряженным частицам, либо по активности остаточного ядра. Третий тип пороговых реакций - легко регистрируемые реакции деления на ^{232}Th , ^{234}U , ^{236}U , ^{238}U , ^{240}Pu . Эти ядра делятся лишь под действием достаточно быстрых нейтронов с энергией больше 0,5-1 МэВ.

Таблица 7.5
Основные характеристики резонансных индикаторов

| Изотоп и ядерная реакция | Содержание в природной смеси, % | $T_{1/2}$ | Энергия основного резонанс. уровня, эВ | Поперечное сечение поглощения нейтр. σ_0 , барн | Поперечное сечение резонанса $\sigma_{r,0}$, барн | Резонансный интеграл активации $I_{r,0}$, барн |
|------------------------------|---------------------------------|-----------|--|--|--|---|
| $^{115}\text{In}(n, \gamma)$ | 95,72 | 54,12 мин | 1,457 | 160±2 | 26558 | 2630±133 |
| $^{197}\text{Au}(n, \gamma)$ | 100 | 2,695 сут | 4,906 | 98,8±0,3 | 37000±500 | 1533±40 |
| $^{186}\text{W}(n, \gamma)$ | 26,4 | 24 ч | 18,84 | 34±7 | | 396±59 |
| $^{139}\text{La}(n, \gamma)$ | 99,91 | 40 ч | 73,5 | 8,2 | 1700 | 13,9±0,5 |
| $^{55}\text{Mn}(n, \gamma)$ | 100 | 2,58 ч | 337 | 13,3±1 | 2800 | 14,0±0,3 |
| $^{63}\text{Cu}(n, \gamma)$ | 69,1 | 12,8 ч | 578 | 4,5±0,1 | 1550 | 5,2±0,2 |
| $^{59}\text{Co}(n, \gamma)$ | 100 | 5,28 лет | 132 | 37,3±0,2 | 9,7*10 ³ | 56,5 |

Из довольно большого количества имеющихся пороговых реакций широкое применение могут найти только те, для которых хорошо известен ход сечения $\sigma(E)$ и которые легко удовлетворяют всем остальным требованиям, предъявляемым к активационным детекторам.

Большинство пороговых реакций оказывается непригодными из-за неподходящих сечений или периода полураспада образующегося радионуклида. Основные пороговые реакции, используемые для регистрации нейтронов, и их характеристики даны в таблице 7.6.

Таблица 7.6
Основные характеристики пороговых детекторов

| Изотоп и ядерная реакция | Содерж. в природной смеси, % | $T_{1/2}$ радионуклида | Эффективный порог реакции $E_{эфф}$ МэВ | Эффективное сечение, усредненное по спектру деления, барн |
|---|------------------------------|------------------------|---|---|
| $^{237}\text{Np}(n,f)$ | - | | 0.65 | 1.42 |
| $^{103}\text{Rh}(n,n'\gamma)^{103m}\text{Rh}$ | 100 | 58.7 мин | 0.80 | 0.95 |
| $^{115}\text{In}(n,n'\gamma)^{115}\text{In}$ | 95.77 | 4.5 ч | 1.15 | 0.302 |
| $^{238}\text{U}(n,f)$ | 99.274 | | 1.6 | 0.608 |
| $^{31}\text{P}(n,p)^{31}\text{Si}$ | 100 | 2.62 ч | 2.55 | 0.122 |
| $^{32}\text{S}(n,p)^{32}\text{P}$ | 95.06 | 14.5 сут | 2.65 | 0.252 |
| $^{54}\text{Mn}(n,p)^{54}\text{Mn}$ | 5.84 | 313.0 сут | 3.0 | 0.372 |
| $^{27}\text{Al}(n,p)^{27}\text{Mo}_2$ | 100 | 9.45 мин | 4.5 | 0.0048 |
| $^{56}\text{Fe}(n,p)^{56}\text{Mn}$ | 91.6 | 154.5 мин | 6.6 | 0.060 |
| $^{24}\text{Mo}_2(n,p)^{24}\text{Na}$ | 78.8 | 15.03 ч | 7.15 | 0.128 |
| $^{65}\text{Cu}(n,2n)^{64}\text{Cu}$ | 30.9 | 12.8 ч | 11.2 | 0.608 |
| $^{55}\text{Mn}(n,2n)^{54}\text{Mn}$ | 100 | 313.0 сут | 11.7 | 0.740 |
| $^{63}\text{Cu}(n,2n)^{62}\text{Cu}$ | 69.09 | 9.8 мин | 12.9 | 0.526 |

7.5. Измерение параметров полей тепловых нейтронов

Спектр тепловых нейтронов в ядерном реакторе в первом приближении описывается Максвелловским распределением, характеризуемым полной плотностью потока нейтронов и эффективной температурой. Но в реальных реакторных системах вследствие избирательного поглощения и утечки нейтронов спектр может существенно отличаться от Максвелловского, а "эффективная" температура этого распределения от температуры среды. В то же время при работе реактора от знания величины и плотности распределения потока и спектра нейтронов зависит правильность и надёжность эксплуатации реактора. Поэтому большое значение придаётся экспериментальным методам проверки расчётных параметров нейтронного поля.

Тепловыми называются нейтроны, находящиеся в энергетическом равновесии с тепловым движением атомов среды, в которой они находятся. Согласно Максвелловскому распределению нейтронов по энергиям, число нейтронов в 1 см^3 с энергиями между E и $E + dE$ равно

$$dn = n(E)dE = \frac{2\pi n}{(\pi kT)^{3/2}} \cdot e^{-\frac{E}{kT}} \cdot \sqrt{E} \cdot dE \quad (7.17)$$

или

$$\frac{(n(E))dE}{n} = \frac{2}{\sqrt{\pi}} e^{-\frac{E}{kT}} \cdot \sqrt{\frac{E}{kT}} \cdot \frac{dE}{kT}, \quad (7.18)$$

где $n = \int_0^{\infty} n(E)dE$ - плотность нейтронов.

Учитывая, что $E = \frac{m\nu^2}{2}$, выражение (7.18) можно записать по-иному:

$$\frac{n(\nu)d\nu}{n} = \frac{4}{\sqrt{\pi}} \cdot e^{-\frac{m\nu^2}{2kT}} \cdot \frac{m\nu^2}{2kT} \cdot \sqrt{\frac{m}{2kT}} \cdot d\nu \quad (7.19)$$

Это уравнение имеет вид распределения Гаусса с максимумом для наиболее вероятной скорости ν_T . Отсюда можно найти наиболее вероятную скорость и энергию:

$$\nu_T = \sqrt{\frac{2kT}{m}} \quad (7.20)$$

и

$$E_T = \frac{m}{2} \nu_T^2 = kT \quad (7.21)$$

При $T=T_0=293,6 \text{ К}$ ($20,4 \text{ }^\circ\text{C}$) $E_{T_0}=kT_0=0,0253 \text{ эВ}$, а $\nu_{T_0} = 2200 \text{ м/с} = \nu_0$.

Средняя скорость нейтронов может быть записана следующим образом

$$\bar{\nu} = \frac{\int_0^{\infty} \nu \cdot n(\nu) d\nu}{\int_0^{\infty} n(\nu) d\nu} = \frac{4}{\sqrt{\pi}} \int_0^{\infty} e^{-\left(\frac{\nu}{\nu_T}\right)^2} \cdot \left(\frac{\nu}{\nu_T}\right)^3 \cdot d\nu = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \nu_T \quad (7.22)$$

Полная плотность потока тепловых нейтронов в этом случае будет равна

$$\Phi = \int_0^{\infty} n(\nu)\nu \cdot d\nu = n\bar{\nu} = n \frac{2}{\sqrt{\pi}} \nu_T \quad (7.23)$$

В низкоэнергетический спектр ядерного реактора входят не только тепловые, но и замедляющие нейтроны. Считают, что до $E=(4-5) \text{ кТ}$ можно пользоваться одним распределением Максвелла, но для более высоких энергий - суммой максвелловского распределения и спектром замедления, часто называемого спектром Ферми. Последний подчиняется $1/E$ -закону.

Типичный $1/E$ -спектр устанавливается в воде или парафине на расстоянии около 10 см от нейтронных источников. Распределение $1/E$ -типа является основной моделью спектра надтепловых нейтронов в реакторе.

В настоящее время для описания поля тепловых нейтронов на фоне нейтронов надтепловых энергий в реакторах широко используется модель Весткотта. Спектр нейтронов представляется в виде суммы двух компонент - максвелловской и надтепловой:

$$n(\nu)d\nu = n_M(\nu)d\nu + n_{HT}(\nu)d\nu \quad (7.24)$$

или

$$n(\nu)d\nu = n(1-f)\rho_M(\nu)d\nu + nf\rho_{HT}(\nu)d\nu, \quad (7.25)$$

где $\rho_M(\nu)$ и $\rho_{HT}(\nu)$ - плотности распределения максвелловского и надтеплогового ($1/E$) соответственно. Плотность максвелловского распределения, исходя из (4.3) и (4.4) может быть записана:

$$\rho_M(\nu) = \frac{4}{\sqrt{\pi}} \frac{\nu^2}{\nu_T^3} \cdot \exp\left[-\left(\frac{\nu}{\nu_T}\right)^2\right]. \quad (7.26)$$

Для надтеплогового распределения введён нижний предел скоростей $\mu^{1/2}\nu_T$ (где μ - условный параметр, характеризующий границу двух спектров). Расчётная величина μ для тяжеловодных систем принимается равной 5. Для уран-графитовых систем величина μ меньше и составляет 3,68. В общем случае μ зависит от замедляющей способности среды и слабо снижается при её увеличении. Кроме того, введена специальная функция переходной области - Δ . Наиболее просто граничная Δ - функция трактуется как функция разрывного типа:

$$\begin{cases} \Delta = 1, E_n \geq \mu kT \\ \Delta = 0, E_n < \mu kT \end{cases} \quad (7.27)$$

Функция описывает надтепловую компоненту нейтронов в той области энергий, где эта компонента накладывается на "хвост" максвелловского распределения тепловых нейтронов.

Для надтепловых нейтронов плотность распределения имеет вид

$$\rho_{HT}(\nu) = \nu_T \cdot \mu^{1/2} \cdot \nu^{-2} \cdot \Delta \quad (7.28)$$

Таким образом, подставив (7.26) и (7.28) в (7.24), низкоэнергетический спектр нейтронов можно представить выражением

$$n(\nu)d\nu = n(1-f) \frac{4\nu^2}{\nu_T^3 \cdot \sqrt{\pi}} \exp\left[-\left(\frac{\nu}{\nu_T}\right)^2\right] d\nu + nf \frac{\nu_T}{\nu^2} \mu^{1/2} \Delta d\nu \quad (7.29)$$

$\rho_M(\nu)$ и $\rho_{HT}(\nu)$ нормированы таким образом, что f определяет долю надтепловой компоненты в интегральной плотности нейтронов n .

Если в поле тепловых нейтронов поместить тонкий детектор, сечение которого в этом интервале энергий пропорционально $1/\nu$, то согласно (3.3), мы получим скорость реакции

$$R = (n\nu_0)\sigma_0 \quad (7.30)$$

Для низкоэнергетического спектра нейтронов, представляющего собой максвелловскую теорию и надтепловую составляющие, Весткотт вместо σ_0 ввёл эффективное сечение $\hat{\sigma}$. То есть скорость реакции в тонком $1/\nu$ -детекторе равна

$$R=(nV_0)\hat{\sigma} \quad (7.31)$$

Для эффективного сечения $\hat{\sigma}$ Весткотт предложил следующую зависимость

$$\hat{\sigma}=\sigma_0(g+rS) \quad (7.32)$$

Параметр r представляет собой характеристику доли надтепловой компоненты низкоэнергетического спектра нейтронов и называется надтепловой характеристикой (индексом) Весткотта.

$$r = \frac{f(\pi\mu)^{1/2}}{4}. \quad (7.33)$$

Величину r обычно определяют экспериментально.

В том случае, когда низкоэнергетический спектр представлен только максвелловской компонентой, эффективное сечение обозначают $\hat{\sigma}_M$. Чтобы выразить $\hat{\sigma}_M$ через табличное σ_0 , Весткотт использовал величину g , характеризующую отклонение $\hat{\sigma}_M$ от зависимости $\sigma(\nu) \sim \frac{1}{\nu}$:

$$g = \frac{\hat{\sigma}_M}{\sigma_0} \quad (7.34)$$

Если отклонения от такой зависимости нет, $g = 1$

Параметр S характеризует отклонение детектора от закона $1/\nu$ в надтепловой области спектра и является функцией эффективной температуры нейтронов.

Понятие эффективной температуры нейтронов T_n представляет собой некоторый формализм для расчёта числа взаимодействия нейтронов и введено для оценки искажения распределения тепловых нейтронов в спектре. Эффективная температура T_n отличается от физической температуры среды T_N и определяется как величина, обеспечивающая наименьшее отклонение распределения Максвелла от реального энергетического распределения нейтронов. Правда, понятие эффективной температуры только тогда имеет смысл, когда реальное распределение плотности нейтронов не слишком отличается от распределения Максвелла ($T_n/T_N < 1,5$).

При практических расчётах удобнее пользоваться не величиной S , а температурно независимой величиной

$$S_0 = S \left(\frac{T_0}{T_n} \right)^{1/2} \quad (7.35)$$

Для золота, которое часто используется как образцовое вещество, $S_0^{Au} = 17,26$; а для индия $S_0^{In} = 18,8$.

После замены S на S_0 уравнение Весткотта и выражение для скорости реакции поглощения нейтронов записывают как

$$\hat{\sigma} = \sigma_0 \left(g + r \sqrt{\frac{T_n}{T_0}} S_0 \right), \quad (7.36)$$

$$R = n\nu_0 \sigma_0 \left(g + r \sqrt{\frac{T_n}{T_0}} S_0 \right). \quad (7.37)$$

Кроме R экспериментально определяемой и очень важной для расчёта характеристик нейтронного поля величиной является кадмиевое отношение $r_{Cd}^{1/\nu}$:

$$r_{Cd}^{1/\nu} = \frac{R_0}{R_{Cd}}, \quad (7.38)$$

где R_0 и R_{Cd} скорости реакции при облучении образца, не экранированного и экранированного кадмием.

Для тонкого $1/\nu$ -детектора, при условии, что кадмий полностью поглощает все нейтроны с энергиями ниже E_{Cd} , Весткотт предложил следующее соотношение между кадмиевым отношением и параметром r :

$$r \sqrt{\frac{T_n}{T_0}} = \frac{F_{Cd}}{r_{Cd}^{1/\nu}}, \quad (7.39)$$

где F_{Cd} - коэффициент, зависящий от толщины σ кадмиевого экрана и углового распределения плотности потока нейтронов (таблица 7.7).

Таблица 7.7

Зависимость коэффициента F_{Cd} от толщины кадмия σ

| σ , см | Направленный пучок нейтронов | Изотопный поток нейтронов |
|---------------|------------------------------|---------------------------|
| 0.0381 | 1.7506 | 1.9913 |
| 0.0508 | 1.8161 | 2.0728 |
| 0.0761 | 1.9165 | 2.1974 |
| 0.1016 | 1.9939 | 2.2931 |
| 0.1524 | 2.1141 | 2.4409 |
| 0.2032 | 2.2054 | 2.5515 |

Плотность потока $\Phi = n\nu_0$ называют условной или весткоттовской и определяют её из выражения:

$$\Phi = n\nu_0 = \frac{R}{\sigma_0(g + rS)} \quad (7.40)$$

Плотность потока тепловых нейтронов Φ_T можно рассчитать, используя величину условной плотности потока и кадмиевое отношение для тонкого $1/\nu$ -детектора:

$$\Phi_T = \Phi(r_{Cd}^{1/\nu} - 1) / r_{Cd}^{1/\nu} \quad (7.41)$$

Таким образом, если характеризовать низкоэнергетическое нейтронное поле согласно теории Весткотта (а имеются и другие теории, не рассматриваемые в настоящей работе), то следует определить параметры nV_0 , T_n и r .

Если бы была известна эффективная температура T_n , то определив экспериментально $R_{Cd}^{1/v}$ для тонкого $1/v$ детектора, по уравнению (7.39) можно было бы определить r . Однако для большинства практических случаев эта температура неизвестна и можно определить лишь произведение $r \sqrt{\frac{T_n}{T_0}}$.

Одним из методов определения T_n и r является метод двух тонких детекторов, сечение одного из которых пропорционально $1/v$, а другого - отличается от пропорциональности. Пусть спектр тепловых нейтронов характеризуется двумя параметрами: r и T_n . Тогда для $1/v$ - детектора, учитывая уравнение (4.21) и то, что $g^{1/v}$ для $1/v$ - детектора равно 1, можно записать:

$$\frac{R^{1/v}}{\sigma_0^{1/v}} = \Phi \left(\kappa_T^{1/v} + r \sqrt{\frac{T_n}{T_0}} \cdot S_0^{1/v} \cdot \kappa_{HT}^{1/v} \right) \quad (7.42)$$

Для детектора, сечение активации которого не подчиняется закону $1/v$, имеем

$$\frac{R}{\sigma_0} = \Phi \left(g\kappa_T + r \sqrt{\frac{T_n}{T_0}} \cdot S_0 \kappa_{HT} \right) \quad (7.43)$$

Величины κ_T и κ_{HT} представляют собой коэффициенты самоэкранирования для тепловых и надтепловых нейтронов соответственно. В уравнениях (7.42) и (7.43) обозначения $R^{1/v}$, $\sigma_0^{1/v}$, $S_0^{1/v}$, $\kappa_0^{1/v}$, $\kappa_{HT}^{1/v}$ относятся к соответствующим величинам для $1/v$ - детектора, а обозначения, не имеющие индекса $1/v$, - к таким же величинам для детектора, сечение которого не следует зависимости $1/v$. $R^{1/v}$ и R определяют экспериментально; $\sigma_0^{1/v}$, σ_0 , $S_0^{1/v}$, S и g можно найти в таблицах 7.8, 7.9 и 7.10.

Взяв отношение (7.43) к (7.42), исключим Φ :

$$\frac{R \cdot \sigma_0^{1/v}}{R^{1/v} \cdot \sigma_0} = \frac{g\kappa_T + r \sqrt{\frac{T_n}{T_0}} \cdot S_0 \cdot \kappa_{HT}}{\kappa_T^{1/v} + r \sqrt{\frac{T_n}{T_0}} \cdot S_0^{1/v} \cdot \kappa_{HT}^{1/v}} \quad (7.44)$$

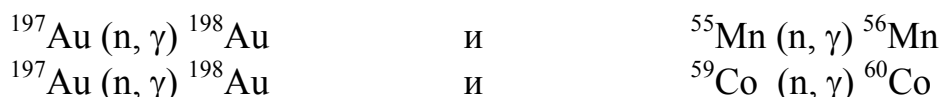
Эффективную температуру из выражения (7.44) однозначно вычислить невозможно, так как в него входит спектральный индекс r , который также неизвестен. Но если известно кадмиевое отношение для тонкого $1/v$ - детектора - $R_{Cd}^{1/v}$, то можно воспользоваться соотношением (7.39) и применить итерационный способ решения. Для этого сначала задаются некоторым значением T_n , например T_0 , затем определяют спектральный индекс r по (7.39), далее находят-

ся первое приближение T_n' из (7.44). Затем цикл вычислений повторяется до тех пор, пока не будет найдено T_n , удовлетворяющее, (7.39) и (7.44). Обычно достаточно трёх - пяти итераций.

Зная r и T_n и учитывая, что $S = S_0 \sqrt{\frac{T_n}{T_0}}$, не трудно по уравнению (7.40) расчи-

тать условную плотность потока Φ . А величина $R_{Cd}^{1/v}$ с помощью уравнения (7.41) позволяет определить плотность потока тепловых нейтронов Φ_T .

В качестве детекторов рекомендуется использовать следующие пары:



Характеристики детекторов приведены в таблицах 7.4, 7.5 и 7.8.

В данном методе марганец и кобальт используют как $1/v$ - детекторы (их резонансы проявляются при достаточно высоких энергиях нейтронов - 337 и 132 эВ соответственно), а золото - как элемент, имеющий в низкоэнергетической части спектра отклонение от $1/v$ (при 4.9 эВ).

Таблица 7.8

Весткоттовские параметры $g(T_0)$ и $S(T_0)$ для детекторов тепловых и надтепловых нейтронов

| Параметр | Наименование изотопа | | | |
|----------|----------------------|--------------------|--------------------|---------------------|
| | ${}^{55}\text{Mn}$ | ${}^{59}\text{Co}$ | ${}^{63}\text{Cu}$ | ${}^{197}\text{Au}$ |
| $g(T_0)$ | 1.000 | 1.000 | 1.000 | 1.0053 |
| $S(T_0)$ | 0.68 | 1.13 | 0.83 | 17.3 |

Таблица 7.9

Коэффициент самоэкранирования k_T для тепловых нейтронов

| Толщина детектора, мг/см ² | Изотропное поле | | | | Направленное поле | | | |
|---------------------------------------|--------------------|--------------------|--------------------|---------------------|--------------------|--------------------|--------------------|---------------------|
| | ${}^{55}\text{Mn}$ | ${}^{59}\text{Co}$ | ${}^{63}\text{Cu}$ | ${}^{197}\text{Au}$ | ${}^{55}\text{Mn}$ | ${}^{59}\text{Co}$ | ${}^{63}\text{Cu}$ | ${}^{197}\text{Au}$ |
| 10 | 0.994 | 0.987 | 0.998 | 0.989 | 0.999 | 0.998 | 1.000 | 0.998 |
| 30 | 0.985 | 0.967 | 0.995 | 0.973 | 0.997 | 0.993 | 0.999 | 0.995 |
| 50 | 0.997 | 0.951 | 0.992 | 0.959 | 0.995 | 0.989 | 0.999 | 0.991 |
| 70 | 0.970 | 0.937 | 0.989 | 0.947 | 0.994 | 0.984 | 0.999 | 0.989 |
| 100 | 0.961 | 0.915 | 0.985 | 0.929 | 0.991 | 0.978 | 0.998 | 0.983 |

Таблица 7.10

Коэффициент самоэкранирования k_{HT} для надтепловых нейтронов.

| Толщина детектора, мг/см ² | Изотропное поле | | | | Направленное поле | | | |
|---------------------------------------|------------------|------------------|------------------|-------------------|-------------------|------------------|------------------|-------------------|
| | ⁵⁵ Mn | ⁵⁹ Co | ⁶³ Cu | ¹⁹⁷ Au | ⁵⁵ Mn | ⁵⁹ Co | ⁶³ Cu | ¹⁹⁷ Au |
| 10 | 0.943 | 0.810 | 0.967 | 0.640 | 0.987 | 0.933 | 0.994 | 0.825 |
| 30 | 0.873 | 0.652 | 0.917 | 0.448 | 0.962 | 0.833 | 0.979 | 0.660 |
| 50 | 0.827 | 0.561 | 0.878 | 0.358 | 0.940 | 0.762 | 0.964 | 0.562 |
| 70 | 0.789 | 0.510 | 0.848 | 0.313 | 0.923 | 0.716 | 0.951 | 0.507 |
| 100 | 0.737 | 0.460 | 0.810 | 0.271 | 0.893 | 0.670 | 0.993 | 0.455 |

7.6. Определение спектров и потоков быстрых нейтронов

Получение точных сведений о потоках и спектрах быстрых нейтронов необходимо не только для реакторов на быстрых нейтронах, в которых происходит значительная часть делений в этой части спектра, но также и для реакторов на тепловых и промежуточных нейтронах. Дело в том, что наиболее проникающие быстрые нейтроны являются обычно основным фактором, определяющим размеры радиационной защиты реактора.

Один из основных экспериментальных методов оценки потоков и спектров нейтронов в реакторе - метод пороговых детекторов.

Характеристики пороговых детекторов приведены в таблице 7.6.

Скорость активации порогового детектора R_i , отнесённая к одному ядру изотопа, связана со спектром быстрых нейтронов $\varphi(E)$ следующим интегральным уравнением:

$$R_i = \int_0^{\infty} \sigma_i(E) \varphi(E) dE; \quad i=1,2,\dots,n \quad (7.45)$$

где $\sigma_i(E)$ - энергетическая зависимость сечения i -го порогового детектора; n - число пороговых детекторов. Обычно по известным значениям R_i и $\sigma_i(E)$ необходимо определить $\varphi(E)$, т.е. необходимо решить систему интегральных уравнений (7.45), а решение такое относится к классу некорректно поставленных задач (системе уравнений (7.45) при конечном n удовлетворяет множество решений). Решение системы интегральных уравнений ищут в виде выражения с конечным числом неизвестных параметров. Имеется несколько методов решения для "восстановления" искомого спектра нейтронов по измеренным скоростям реакции, т.е. для нахождения функции $\varphi(E)$. Мы рассмотрим методику восстановления спектра быстрых нейтронов экспрессным методом.

Восстановление спектра быстрых нейтронов экспрессным методом

Исходные данные метода представляют собой экспериментальную информацию в виде скоростей реакций R_j и ядерно-физические характеристики использованных реакций. По этим данным определяют значения интегральной плотности потока нейтронов при энергии эффективных пороговых реакций активации, и далее восстанавливают дифференциальный спектр нейтронов.

Интегральную плотность потока нейтронов определяют из соотношения:

$$\Phi_{E_{эфф,i}} = \frac{R_i}{\sigma_{эфф,i}}, \quad (7.46)$$

где $\Phi_{E_{эфф,i}}$ - интегральная плотность потока нейтронов с энергией выше эффективного порога i -й реакции, R_i - скорость реакции, $\sigma_{эфф,i}$ - эффективное сечение при эффективном пороге $E_{эфф,i}$. Таким образом определяют n значений интегральной плотности потока нейтронов для соответствующих значений энергий $E_{эфф,i}$.

Первой операцией при восстановлении дифференциального спектра является разбиение энергетической шкалы на интервалы восстановления. Границы интервалов, кроме последнего должны совпадать со значением эффективных порогов используемых реакций. Последний интервал $E_{эфф,n-1} - 18$ МэВ содержит внутри себя значение $E_{эфф,n}$.

Внутри каждого интервала дифференциальный спектр аппроксимируется зависимостью

$$\varphi(E) = \varphi(E_K) \exp[-\mu(E - E_K)], \quad (7.47)$$

где $\varphi(E_K)$ - значение дифференциальной плотности потока нейтронов на нижней (меньшей) границе k -го интервала; μ_K - постоянная, характеризующая скорость изменения спектра. Восстановление начинают с последнего интервала $E_m - 18$ МэВ (m - количество интервалов). Определяют $\varphi(E_m)$ - значение дифференциальной плотности потока на нижней границе интервала:

$$\varphi(E_m) = \frac{\Phi(E_m)}{E_{m+1} - E_m} \ln \frac{\Phi(E_m)}{\Phi(E_{m+1})}, \quad (7.48)$$

где E_{m+1} - энергия внутри последнего интервала.

Для любого k -го интервала ($E_k - E_{k+1}$) кроме последнего, значение дифференциальной плотности потока нейтронов на нижней границе интервала $\varphi(E_k)$ вычисляется по соотношению

$$\varphi(E_K) = r_K \varphi(E_{K+1}), \quad (7.49)$$

где r_K - отношение значений дифференциального спектра нейтронов на границах интервалов, определяемое из уравнения

$$\frac{r_K - 1}{\ln r_K} = \frac{1}{\varphi(E_{k+1})} \cdot \frac{\Phi(E_K) - \Phi(E_{K+1})}{E_{K+1} - E_K} = M_K \quad (7.50)$$

Значения r_K в зависимости от M_K приведены в таблице 7.11.

Ширина интервалов должна быть такой, чтобы соблюдалось условие $M_K \geq 1$. Если на каком-либо интервале окажется, что $M_K < 1$, этот интервал следует расширить, удвоив ΔE .

Расчёт по формулам (7.49) и (7.50) реализуется, начиная с предпоследнего интервала, для которого $\varphi(E_m)$ определяется по формуле (7.48).

Значения дифференциального спектра наименее уклоняются от "истинного" значения в условно-достоверных точках. Значения энергии условно-достоверной точки (E) и соответствующие им значения дифференциального

спектра нейтронов для всех интервалов, кроме последнего, равны соответственно

$$E_K^* = E_{K+1} - \frac{E_{K+1} - E_K}{\kappa_K}, \quad (7.51)$$

$$\varphi(E_K^*) = \varphi(E_{K+1}) \cdot r_K^{1/\kappa_K}. \quad (7.52)$$

Значения κ_K и r_K в зависимости от M_K приведены в таблице 7.11.

Для последнего интервала значение энергии условно-достоверной точки и соответствующее ему значение спектра равны соответственно

$$E_m^* = E_m + \frac{E_{m+1} - E_m}{\ln \frac{\Phi(E_m)}{\Phi(E_{m+1})}}, \quad (7.52)$$

$$\varphi(E_m^*) = \frac{1}{e} \varphi(E_m) \quad (7.53)$$

Кривую дифференциального спектра проводят графически через условно-достоверные точки в полулогарифмических координатах $\lg(E) - E$.

Таблица 7.11.

Параметры, используемые в экспресс методе определения спектра быстрых нейтронов

| M_K | r_K | κ_K | r_K^{1/κ_K} |
|-------|-------|------------|--------------------|
| 1.000 | 1.000 | 2.000 | 1.000 |
| 0.049 | 1.100 | 1.968 | 1.049 |
| 1.096 | 1.200 | 1.941 | 1.098 |
| 1.188 | 1.400 | 1.893 | 1.194 |
| 1.276 | 1.600 | 1.855 | 1.288 |
| 1.391 | 1.800 | 1.822 | 1.380 |
| 1.442 | 2.000 | 1.794 | 1.471 |
| 1.599 | 2.400 | 1.748 | 1.650 |
| 1.748 | 2.800 | 1.711 | 1.825 |
| 1.891 | 3.200 | 1.681 | 1.977 |
| 2.029 | 3.600 | 1.655 | 2.167 |
| 2.164 | 4.000 | 1.634 | 2.335 |
| 2.294 | 4.400 | 1.615 | 2.502 |
| 2.422 | 4.800 | 1.598 | 2.668 |
| 2.485 | 5.000 | 1.590 | 2.750 |
| 2.609 | 5.400 | 1.576 | 2.194 |
| 2.730 | 5.800 | 1.563 | 3.077 |
| 2.850 | 6.200 | 1.552 | 3.239 |
| 2.967 | 6.600 | 1.541 | 3.400 |
| 3.083 | 7.000 | 1.531 | 3.561 |

7.7 Определение выхода радиоактивных нейтронных источников.

Увеличение нейтронных измерений в стране обусловило расширение номенклатуры нейтронных источников и возросшие требования к их аттестации. Принято считать, что контролировать выход нейтронного источника (число нейтронов, испускаемых в единицу времени) следует с погрешностью, не превышающей 2 - 3 %. Хорошие результаты по измерению выхода нейтронных источников дают методы активации марганца и активации золотых фольг. Эти методы положены в основу эталонного комплекса измерительных средств для воспроизведения единицы потока нейтронов.

7.7.1. Метод активации марганца

Этот метод основан на абсолютном измерении активности ^{56}Mn , наведенной под действием нейтронов источника, помещенного в центре бака с раствором сернокислого марганца.

Нейтроны, испускаемые источником, замедляются в воде до тепловых энергий и затем поглощаются, но не только ядрами марганца, а также ядрами водорода и серы. Поэтому поток нейтронов из источника Q связан с насыщенной активностью марганца A_{Mn} следующим образом:

$$Q = \frac{N_{\text{Mn}}\sigma_{\text{Mn}} + N_{\text{S}}\sigma_{\text{S}} + N_{\text{H}}\sigma_{\text{H}}}{N_{\text{Mn}} \cdot \sigma_{\text{Mn}}} A_{\text{Mn}}, \quad (7.54)$$

где N_{Mn} , N_{S} , N_{H} - число ядер марганца, серы и водорода в 1 см^3 раствора; σ_{Mn} , σ_{S} , σ_{H} - сечения захвата тепловых нейтронов соответствующих элементов.

Эталонная установка состоит из бака диаметром и высотой 85 см с раствором MnSO_4 и аппаратуры для измерения наведенной активности ^{56}Mn .

Исследуемый источник помещается в центре бака. Процесс облучения длится 17 - 18 ч. После удаления источника раствор перемешивается. Активность раствора можно измерять с помощью погружаемого сцинтилляционного счетчика, состоящего из кристалла $\text{NaJ}(\text{Tl})$ и фотоумножителя с предусилителем. С помощью одноканального анализатора счетчик настраивается на линию γ - излучения ^{56}Mn с энергией 845 кэВ.

Для определения эффективности погружаемого счетчика в бак с неактивным раствором MnSO_4 добавляется имеющий точно известную активность раствор MnSO_4 , облученный в реакторе. Удельная активность добавляемого раствора измеряется абсолютным методом $4\pi\beta$ - счета с погрешностью 0,5 - 1 %. При градуировке счётчика следует учесть распад радионуклида за время, прошедшее с момента определения удельной активности. Фон счётчика определяется при погружении его в неактивный раствор.

Если обозначить $A_{\text{Э}}$ активность эталонного раствора сульфата марганца, $I_{\text{Э}}$ - скорость счета (показания счетного прибора) от счетчика, погруженного в эталонный раствор, а I_{X} - аналогичная скорость счета для испытуемого раствора, то A_{M} может быть рассчитано

$$A_{Mn} = \frac{A_{\text{Э}} \cdot I_X \cdot e^{-\frac{0,693t}{T_{1/2}}}}{I_{\text{Э}}}, \quad (7.55)$$

где t - время от извлечения источника из бака до измерения активности. Точность измерений потока нейтронов из источника определяется в основном погрешностью градуировки погружаемого счётчика, точностью абсолютных измерений активности раствора, облученного в реакторе, а также точностью измерений сечений. По данным многих проверок среднее квадратическое отклонение результата измерений данным методом составляет 1 - 1,2 %.

7.7.2 Метод активации золотых фольг

Метод основан на замедлении быстрых нейтронов, испускаемых источником, и абсолютном измерении числа тепловых нейтронов, находящихся в объёме замедлителя. С учетом некоторой доли быстрых нейтронов, которые поглощаются в процессе замедления, поток нейтронов из источника равен числу тепловых нейтронов в системе.

Исследуемый источник помещается в сосуд с водой достаточно больших размеров, и детектором с высокой эффективностью измеряется распределение тепловых нейтронов в замедлителе. Затем в одной или нескольких точках плотность потока тепловых нейтронов измеряется абсолютным методом активации золотых фольг. Так как распределение тепловых нейтронов не зависит от типа детектора, отношение удельной активности золотой фольги к числу отсчетов детектора, помещенного на том же расстоянии от источника нейтронов, является постоянной величиной для любого расстояния. Поток нейтронов из источника определяется из следующего соотношения:

$$Q = 4\pi \frac{\sigma_H \cdot N_H}{\sigma_{Au} \cdot N_{Au}} \cdot k \cdot F \int_0^{\infty} N(r) r^2 dr, \quad (7.56)$$

где σ_H и σ_{Au} - сечения захвата тепловых нейтронов водородом и золотом; N_H и N_{Au} - число ядер водорода и золота в единице объема воды и золота соответственно; $N(r)$ - число отсчетов нейтронного детектора в единицу времени на расстоянии r от источника; F - отношение удельной активности золотой фольги к числу отсчетов нейтронного детектора на том же расстоянии; K - поправка на поглощение быстрых нейтронов кислородом воды, поглощение тепловых нейтронов в источнике и эффект возмущения потока тепловых нейтронов фольгой. Интеграл находят методом графического интегрирования экспериментально определенной зависимости $N(r)$.

Так как формула 7.56, предполагающая изменение σ по закону $1/v$, для ^{197}Au справедлива только для энергии 4, 95 эВ (первый резонанс), необходимо учитывать вклад резонансной активности методом кадмиевой разности. Для этого плотность потока тепловых нейтронов измеряется несколькими золотыми фольгами (диаметр 20 мм, толщина 0,01 мм) с кадмиевым экраном и без него.

Активность, наведенная в золотых фольгах, измеряется методом β - γ - совпадений.

На рис. 7.4 представлена кривая распределения плотности потока тепловых нейтронов $N(r) r^2$ для Ra - Be (α , n) - источника, снятая для расстояний от 4 до 35 см. На расстояниях, меньших 4 см, кривая распределения экстраполируется к нулю по Гауссу. При расстояниях от 35 см до ∞ кривая распределения экстраполируется по экспоненте с показателем (r/L) , где L - определяется экспериментально по распределению на расстояниях 20 - 35 см, где этот закон уже не выполняется. Погрешность графического интегрирования распределения тепловых нейтронов с учётом неопределённости экстраполяции составляет 0,5 %. Среднеквадратическое отклонение результата от измерений данным методом составляет 1,2 - 1,4 %.

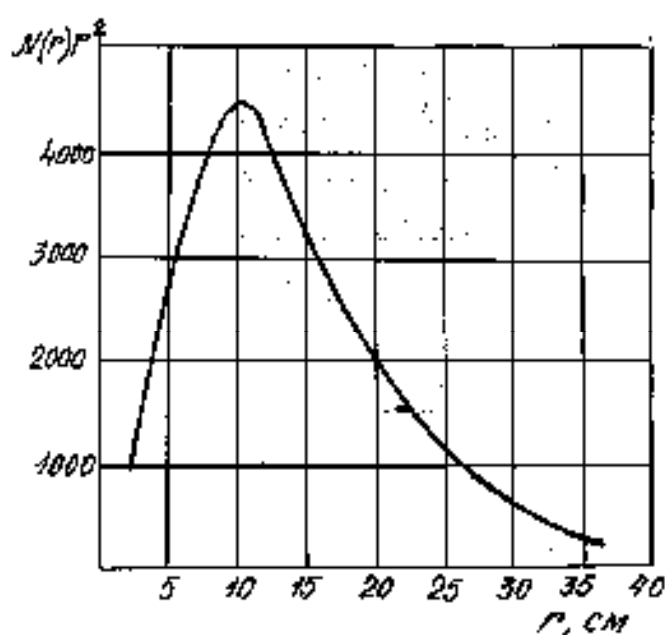


Рис. 7.4 Распределение плотности потока тепловых нейтронов в воде для Pu-Be (α - n) - источника.

Глава 8. СТАТИСТИЧЕСКАЯ ОБРАБОТКА РЕЗУЛЬТАТОВ РАДИОМЕТРИЧЕСКИХ ИЗМЕРЕНИЙ

Мало получить тот или иной результат — важно правильно оценить точность и надежность экспериментальных данных. Неоправданное завышение точности может привести к «открытию» каких-то эффектов там, где имеются лишь случайные колебания результатов; при занижении точности может оказаться, что не будут обнаружены действительно существующие закономерности. Некоторые приемы статистического анализа рассматриваются в этой главе. При измерениях радиоактивности, так же как и при измерении любых физических величин, приходится считаться с тем, что результаты измерений отягощены погрешностями того или иного происхождения.

Различают систематические, случайные и грубые погрешности. *Систематические погрешности* вызываются факторами, действующими одинаковым образом при выполнении измерений одним и тем же методом с помощью одного и того же измерительного прибора. Во всех таких измерениях систематические погрешности принимают одинаковые значения. В некоторых случаях они настолько велики, что могут совершенно исказить результат измерений. Однако всегда существует принципиальная возможность изучить систематические погрешности и полностью исключить их влияние путем изменения условий эксперимента либо введения соответствующих поправок. В зависимости от наличия априорных сведений об их природе и размере систематические погрешности можно разделить на следующие группы.

1. Погрешности известного происхождения, которые могут быть точно определены. Такова, например, погрешность при измерении абсолютной активности, связанная с геометрическими условиями измерения, которую компенсируют путем введения геометрического коэффициента η . Если конфигурация препарата и рабочей поверхности детектора достаточно проста, то геометрический коэффициент можно рассчитать с любой степенью точности. Погрешность, обусловленную разветвленностью схемы распада (ей соответствует поправка на схему распада p), также можно считать известной, по крайней мере, для тех изотопов, схемы распада которых детально изучены.
2. Погрешности, природа которых известна, а точное значение не установлено. К этой группе можно отнести погрешности, связанные с вероятностью регистрации излучения в рабочем объеме детектора, ослаблением излучения в воздухе и стенке детектора, самоослаблением его в веществе препарата и обратным рассеянием от подложки. Их учитывают путем введения соответствующих коэффициентов — эффективности ε , ослабления k , самоослабления S , обратного рассеяния q . Эти поправочные коэффициенты определяются с помощью формул и эмпирических графиков (см. гл. 3), точность которых не превышает 10%. Дело в том, что коэффициенты ε , k , S , q изменяются в зависимости от геометрических условий измерения. Используемые же в работе формулы и графики справедливы лишь для какого-то определенного

(к тому же обычно не указываемого) значения геометрического коэффициента. Таким образом, точные значения коэффициентов ε , k , S , q остаются неизвестными, можно лишь утверждать, что они отличаются от найденных с помощью формул и графиков на 10—15%. К этому же типу поправок будет относиться и геометрический коэффициент, если его определяли с помощью стандартного излучателя. Конечно, во всех рассмотренных случаях можно определить соответствующие поправки совершенно точно, однако работа такого рода зачастую требует постановки самостоятельного исследования. Поэтому, если не требуется высокая точность результата, довольствуются поправками, точное значение которых неизвестно.

3. Неизвестные исследователю погрешности. Чтобы обнаружить такие погрешности, необходимо проводить измерения различными методами.

При регистрации радиоактивности источником неучитываемых погрешностей может быть рассеяние излучения от внутренних стенок защитного домика. В некоторых случаях такое отражение излучения может приводить к завышению скорости счета в два раза. Чтобы обнаружить такую погрешность, необходимо выполнить ряд измерений, помещая препарат в защитные домики разных размеров и сохраняя постоянным геометрический коэффициент. В дальнейшем следует либо вводить поправку на эту погрешность, либо работать в таких условиях, чтобы погрешность за счет рассеяния излучения от стенок была пренебрежимо мала. К этой же группе примыкают погрешности, обусловленные неоднородностью измеряемого объекта. Источником такой неоднородности может быть, например, неравномерность распределения радиоактивного вещества по поверхности препарата, а также отличие истинной формы препарата от ожидаемой (пятно с неровными краями вместо круга). Для выявления подобных погрешностей следует поместить между препаратом и детектором щелевую диафрагму и провести несколько измерений, каждый раз поворачивая препарат на некоторый случайный угол вокруг оси. Если результаты этих измерений обнаружат значительный разброс, необходимо пересмотреть методику приготовления препаратов либо обратиться к таким условиям измерений, при которых погрешность за счет неоднородности препарата была бы несущественна (например, располагать препарат на таком расстоянии от детектора, чтобы его можно было считать практически точечным).

Случайные погрешности обусловлены влиянием ряда причин, действие которых **неодинаково** в каждом опыте и не может быть учтено. В измерениях, выполненных **одинаковым образом**, случайные погрешности принимают **различные** значения. Чтобы проверить, оказывают ли случайные погрешности заметное влияние на результаты измерений, нужно несколько раз повторить измерения при одинаковых условиях опыта. Если каждый раз будут получаться несколько отличающиеся результаты, можно сделать вывод, что данные отягощены случайными погрешностями.

Вернемся к примеру с неоднородным распределением радиоактивного вещества по поверхности препарата. Если препарат измеряют однократно, то погрешность за счет его неоднородности следует рассматривать как систематическую. Но если проводят несколько измерений одного и того же препарата, каждый

раз поворачивая его на некоторый угол вокруг оси и используя в качестве детектора цилиндрический счетчик или торцовый счетчик со щелевой диафрагмой, то погрешность, обусловленная неоднородностью измеряемого объекта, становится случайной. Заметим, что *так обычно и выявляют систематические погрешности*. А именно, ставят эксперимент таким образом, чтобы подозреваемая систематическая погрешность могла принимать различные значения в разных опытах, т. е. стала случайной погрешностью. Если при этом рассеяние результатов существенно возрастает, то можно заключить, что в каждый результат вносится систематическая погрешность. Одновременно можно оценить предельное значение этой погрешности.

Появление случайных погрешностей может быть связано не только со случайными колебаниями большого числа факторов, влияющих на измерения, но и с **вероятностным характером самого изучаемого процесса**. Так, в случае радиометрических определений наряду с другими погрешностями в результат вносится дополнительная неопределенность, обусловленная вероятностным характером радиоактивного распада. С этой неопределенностью связан минимальный уровень рассеяния, ниже которого при данных условиях измерения радиоактивности погрешность быть не может. Нельзя заранее предсказать, чему будет равна случайная погрешность в отдельном измерении, поэтому невозможно предсказать и точную величину результата, который будет получен в данном опыте. Однако, если известен закон распределения экспериментальных результатов, содержащих случайные погрешности, то можно подсчитать вероятность того, что результат измерений окажется в пределах заданного интервала значений.

В результаты наблюдений могут вкратиться и такие погрешности которые обусловлены лишь невнимательностью экспериментатора (неверная запись показаний прибора, неправильное считывание отсчета со шкалы, отступления от общепринятой методики проведения работы и т. п.). Это так называемые **грубые погрешности**. Для устранения их необходимо соблюдать аккуратность и тщательность в работе и записях результатов. Во избежание таких погрешностей следует повторять измерения в несколько отличных условиях.

8.1. Генеральная и выборочная совокупность. Расчет среднего и дисперсии по выборочным данным

Представим себе, что при данных условиях выполнено бесконечно большое число измерений одной и той же величины. Полученную бесконечную гипотетическую совокупность результатов называют *генеральной совокупностью*. Величины μ и σ^2 — параметры генеральной совокупности; их точные значения можно было бы найти, зная лишь все элементы генеральной совокупности. Истинное значение измеряемой величины μ , называемое *генеральным средним*, равно

$$\mu = \sum_{i=-\infty}^{\infty} x_i P(x_i) \quad (8.1)$$

где $P(x_i)$ — вероятность появления результата x_i . (Отрицательные значения i характеризуют те результаты измерений, которые были получены ранее некоторого условного момента, принятого за начало отсчета.) Параметр σ^2 представляет собой *генеральную дисперсию*. Генеральная дисперсия определяется равенством

$$\sigma^2 = \sum_{i=-\infty}^{\infty} (x_i - \mu)^2 P(x_i) \quad (8.2)$$

Любую совокупность результатов измерений, выполненных при данных условиях опыта, принято рассматривать как случайную выборку из генеральной совокупности, т. е. как *выборочную совокупность*. (В экспериментаторской практике опыты, результаты которых составляют выборочную совокупность, называют обычно *параллельными*.) Выборочная совокупность характеризуется значениями выборочных параметров, которые являются функциями величин, составляющих выборочную совокупность. Чтобы четко разграничивать генеральные и выборочные параметры, для обозначения генеральных параметров используют греческие буквы, а выборочных — латинские. *Выборочное среднее* определяют как *среднее арифметическое* x из n результатов измерений:

$$\bar{x} = \frac{x_1 + x_2 + \dots + x_n}{n} = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n x_i \quad (8.3)$$

Выборочную дисперсию обозначают через s_x^2 и вычисляют по формуле

$$s_x^2 = \frac{\sum_{i=1}^n (x_i - \bar{x})^2}{n-1} \quad (8.4)$$

или по эквивалентной ей формуле

$$s_x^2 = \frac{\sum_{i=1}^n x_i^2 - \frac{\left(\sum_{i=1}^n x_i\right)^2}{n}}{n-1} \quad (8.5)$$

Знаменатель в выражениях (8.4) и (8.5) характеризует *число степеней свободы* для выборочной дисперсии. Число степеней свободы f равно числу независимых измерений минус число дополнительных связей, налагаемых на экспериментальный материал в процессе его обработки. Так, на n независимых результатах измерений при расчете среднего арифметического накладывается одна связь вида (3), поэтому число степеней свободы при определении выборочной дисперсии $f = n-1$.

Нередко для характеристики разброса (рассеяния) данных указывают *относительную погрешность*, которая определяется как отношение соответствующей абсолютной погрешности к среднему значению измеряемой величины.

Относительное выборочное квадратическое отклонение равно

$$\delta_x = s_x / \bar{x} \quad (8.6)$$

При обработке результатов эксперимента необходимо всегда помнить о различии между генеральными и выборочными параметрами. Генеральные параметры являются постоянными, характеризующими закон распределения случайных величин (результатов измерений, отягощенных случайными погрешностями), в то время как выборочные параметры сами суть случайные величины. Поэтому имеют место лишь приближенные равенства:

$$\mu \approx \bar{x}, \quad \sigma^2 \approx s^2 \quad (8.7)$$

которые выполняются тем точнее, чем больше число проведенных измерений. Величины \bar{x} и s^2 представляют собой *точечные оценки* генеральных параметров, однако приближенные равенства (8.7) не дают представления о точности, с которой установлены значения μ и σ^2 . Поэтому при обработке экспериментальных данных используются методы *интервального оценивания*, позволяющие рассчитывать границы интервала, внутри которого с заданной вероятностью может находиться значение генерального параметра. Ширина такого интервала (или половина его ширины) определяет точность результата измерений, а вероятность того, что оцениваемый параметр будет лежать в пределах этого интервала, характеризует надежность оценки. Методы интервального оценивания будут рассмотрены ниже,

8.2. Статистический характер радиоактивного распада и распределение Пуассона

В зависимости от организации эксперимента и процедуры измерений появление случайных погрешностей можно связать с теми или иными конкретными причинами. Так, например, если производят несколько измерений одного и того же препарата, не изменяя его положения, то источником случайных погрешностей могут быть колебания стабилизированного напряжения и (или) величины фона. Если при измерениях поворачивают препарат на некоторый случайный угол, используя цилиндрический счетчик или торцовый счетчик со щелевой диафрагмой, то кроме названных причин на возникновение случайных погрешностей может влиять неравномерность распределения радиоактивного вещества по поверхности препарата и (или) недостаточно четкая фиксация препарата в кассете для измеряемых образцов. Если измеряют серию препаратов, приготовленных из одинаковых объемов радиоактивного раствора, то помимо колебаний стабилизированного напряжения и фона, неоднородности препаратов и смещения их относительно счетчика на рассеяние результатов, возможно, будут оказывать влияние и факторы, связанные с методикой приготовления препаратов (точность определения объемов, неполнота осаждения и т. п.).

Этот перечень можно продолжить и дальше — случайные погрешности возникают на любой стадии проведения эксперимента. Но каковы бы ни были случайные погрешности, искажающие результат отдельного измерения, в каждый результат вносится *погрешность, обусловленная статистическим характером радиоактивного распада*. Радиоактивные превращения — это процесс, которому присущ вероятностный характер. Законы радиоактивного распада и накопления — статистические законы, проявляющиеся лишь для достаточно

большого числа радиоактивных ядер. Основные предположения, на основании которых можно найти закономерности, характеризующие вероятностную природу радиоактивного распада, заключаются в следующем.

1. Вероятность $p_{\Delta t}$ распада отдельного ядра за время Δt не зависит от условий, в которых ядро находилось ранее или находится в данное время, а зависит только от размера интервала Δt и для достаточно малых отрезков времени пропорциональна Δt : $p_{\Delta t} = \lambda \Delta t$ (здесь λ — коэффициент пропорциональности).
2. Вероятность $p'_{\Delta t}$ того, что одно из N ядер распадется в течение бесконечно малого интервала времени Δt , пропорциональна Δt и наличному количеству ядер: $p'_{\Delta t} = \lambda N \Delta t$, или, принимая во внимание, что ожидаемое среднее число распадов в единицу времени $\bar{a} = \lambda N$, $p'_{\Delta t} = \bar{a} \cdot \Delta t$.
3. Вероятность того, что за промежуток времени t , малый по сравнению с периодом полураспада, распадется m ядер, не зависит от того, какое количество ядер распалось в предшествующие промежутки времени равного размера.

Первое условие приводит к основному закону радиоактивного распада. Действительно, если вероятность распада отдельного ядра за время Δt определяется условием 1, то вероятность противоположного события (того, что ядро не распадется за это время) равна

$$q_{\Delta t} = 1 - p_{\Delta t} = 1 - \lambda \Delta t \quad (8.8)$$

Но если ядро не распалось в течение времени Δt , то вероятность того, что оно не распадется в течение второго такого же интервала времени, снова равна $(1 - \lambda \Delta t)$. Вероятность же того, что ядро не распадется ни в первый, ни во второй интервалы времени, равна произведению этих вероятностей; рассуждая и далее подобным образом, получим

$$\begin{aligned} q_{2\Delta t} &= (1 - \lambda \Delta t)^2 \\ q_{3\Delta t} &= (1 - \lambda \Delta t)^3 \\ &\dots\dots\dots \\ q_{3\Delta t} &= (1 - \lambda \Delta t)^3 \end{aligned} \quad (8.9)$$

Интервал Δt можно представить как $\Delta t = t/n$ (промежуток времени t делится на n не перекрывающихся интервалов размером Δt). Переходя к пределу при $n \rightarrow \infty$, найдем вероятность того, что отдельное ядро не претерпит распада в течение времени t :

$$q_t = \lim_{n \rightarrow \infty} \left(1 - \lambda \frac{t}{n} \right)^n = e^{-\lambda t} \quad (8.10)$$

Из определения вероятности следует, что при многократном повторении испытаний отношение числа ядер N_t , не распавшихся за время t , к числу ядер в начальный момент времени N_0 должно колебаться около величины q_t так что можно записать

$$N_t / N_0 \approx e^{-\lambda t} \quad (8.11)$$

Мы пришли к интегральной форме закона радиоактивного распада

$$N_0 = N_0 \cdot e^{-\lambda t}, \quad (8.12)$$

но теперь ясно видно, что в силу статистического характера этого закона он должен выполняться лишь приближенно. Экспоненциальный характер закона распада проявляется в результате усреднения случайных отклонений числа распадающихся ядер от теоретически ожидаемого. Это можно проиллюстрировать рис. 1, на котором в полулогарифмическом масштабе нанесены результаты измерения скорости счета при определении периода полураспада ^{56}Mn (продолжительность каждого измерения 1 мин, интервал между измерениями 2 мин). Исходя из условий 2 и 3, можно вывести закон, определяющий вероятности $P(m)$ того, что в течение промежутка времени t произойдет m актов распада, если среднее число актов распада за время t равно $\bar{At} = \mu$:

$$P(m) = \frac{\mu^m e^{-\mu}}{m!} \quad (8.13)$$

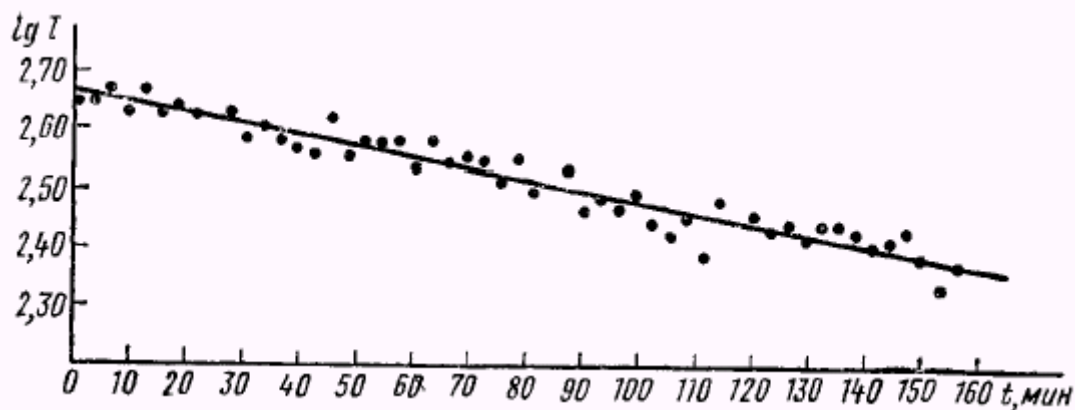


Рис. 8.1. Статистический характер закона радиоактивного распада

Такое распределение вероятностей называется *распределением Пуассона** В выражение (13) входит только один параметр (μ), от которого зависит вид кривой пуассоновского распределения. Как уже было сказано, μ — это среднее значение случайной величины (в данном случае величины, распределенной по закону Пуассона); замечательно, что дисперсия распределения Пуассона также равна μ :

$$\sigma_{\text{пуасс}}^2 = \mu \quad (8.14)$$

На рис. 8.1 показаны кривые распределения Пуассона для μ равным 1, 5 и 10. Заметим, что в отличие от нормального распределения распределение Пуассона дискретно: величины m могут принимать лишь положительные целочисленные значения. Поэтому было бы правильнее изображать вероятности появления каждого значения m вертикальными отрезками. Однако для наглядности на рис. 8.2 через точки, соответствующие вероятностям $P(m)$, проведены плавные кривые.) Из рисунка видно, что при малых значениях μ распределение Пуассона асимметрично (максимум смещен влево), но по мере роста μ кривые становятся все более симметричными, приближаясь к виду кривой нормально-

го распределения. Практически уже при $\mu = 10$ распределение Пуассона достаточно хорошо аппроксимируется нормальным распределением, оба параметра которого равны μ .

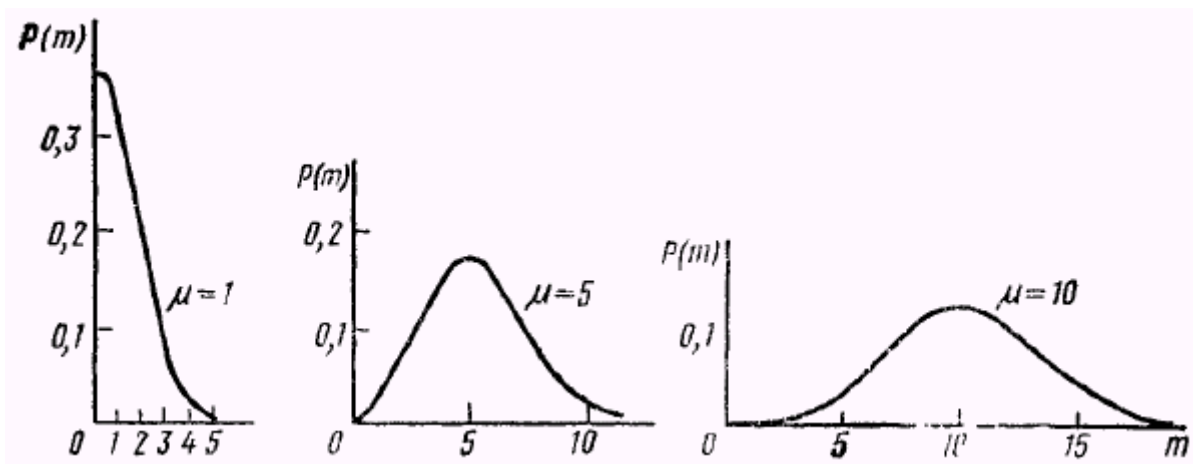


Рис.8.2. Вид распределения Пуассона для различных значений μ

Если рассеяние результатов вызвано лишь статистическим характером распада, то распределение числа импульсов N , регистрируемых детектором за время t , также подчиняется закону Пуассона. А именно, вероятность $P(N)$ того, что за выбранный промежуток времени будет зарегистрировано N имп. если среднее число регистрируемых импульсов составляет \bar{N} , определяется выражением

$$P(N) = \frac{\bar{N}^N e^{-\bar{N}}}{N!} \quad (8.15)$$

По аналогии с (14) дисперсия пуассоновского распределения числа регистрируемых прибором импульсов равна

$$\sigma_{\text{пуасс}}^2 = \bar{N} \quad (8.16)$$

Соответствующее среднее квадратическое отклонение называют иногда *абсолютной квадратической флуктуацией*, чтобы подчеркнуть его природу. Если в единичном опыте зарегистрировано достаточно большое число импульсов N_i , то для определения среднего квадратического отклонения вместо \bar{N} можно использовать N_i . Таким образом

$$\sigma_{\text{пуасс}}^2 = \bar{N} \approx \sqrt{N_i} \quad (8.17)$$

Как уже говорилось, величина N_i в формуле (17) представляет собой число импульсов, зарегистрированных прибором за t мин. В таком случае скорость счета равна

$$I_i = N_i / t \quad (8.18)$$

Среднее квадратическое отклонение скорости счета, обусловленное статистическим характером распада (абсолютная квадратическая флуктуация), составляет

$$\sigma_{\text{пуасс}(I)} = \frac{\sigma_{\text{пуасс}(I)}}{t} = \frac{\sqrt{\bar{N}}}{t} = \sqrt{\frac{\bar{I}}{t}} \approx \sqrt{\frac{I_i}{t}} \quad (8.19)$$

а относительная квадратическая флуктуация равна

$$\delta_{\text{пуасс}}(I) = \frac{\sigma_{\text{пуасс}}(I)}{\bar{I}} = \frac{1}{\sqrt{\bar{I}t}} \approx \frac{1}{\sqrt{I_i t}} \quad (8.20)$$

Из формулы (8.20) следует, что величина относительных погрешностей, связанных со статистическим характером распада, уменьшается с увеличением регистрируемой скорости счета I и продолжительности отдельного измерения t . Погрешность, связанная с флуктуациями радиоактивного распада, входит в выборочное среднее квадратическое отклонение s_x , которое можно рассчитать по следующим формулам:

$$s_I = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^n (I_i - \bar{I})^2}{n-1}} = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^n I_i^2 - \frac{\left(\sum_{i=1}^n I_i\right)^2}{n}}{n-1}} \quad (8.21)$$

Величина $\sigma_{\text{пуасс}}$ определяет минимально возможное среднее квадратическое отклонение при заданных значениях I и t . Таким образом, в отсутствие иных источников рассеяния, кроме статистического характера радиоактивного распада,

$$s_I \approx \sigma_{\text{пуасс}}(I) \quad (8.22)$$

Вследствие того, что выборочное среднее квадратическое отклонение s_i — случайная величина, его значение в некоторых опытах может оказаться меньше, чем $\sigma_{\text{пуасс}}(I)$. Однако всегда следует иметь в виду, что $\sigma_{\text{пуасс}}(I)$ характеризует минимально возможное рассеяние значений скорости счета в генеральной совокупности, отвечающей выбранным условиям эксперимента.

Некоторые методы статистического анализа

При обработке результатов эксперимента перед исследователем возникают различные задачи, для решения которых используют методы математической статистики. Наиболее типичны следующие две задачи.

1. Оценка параметров генеральной совокупности на основании выборочных данных. Вполне определенной оценкой неизвестного параметра (особенно в случае малых выборок) является интервальная оценка.
2. Проверка каких-либо предположений относительно свойств генеральных совокупностей, из которых производятся выборки (такие предположения называют *статистическими гипотезами*). Так, например, для выявления погрешностей, не связанных со статистическим характером радиоактивного распада, важно знать, подчиняются ли результаты измерения радиоактивности распределению Пуассона. Иными словами, подлежит проверке статистическая гипотеза о том, что эмпирическое распределение результатов совпадает с теоретически ожидаемым распределением Пуассона.

В этом разделе будут описаны методы интервального оценивания генерального среднего, а также процедура проверки гипотезы о пуассоновском распределе-

нии результатов.

8.3. Основные понятия теории интервального оценивания. Оценка генерального среднего на основании выборочных данных

Доверительным интервалом неизвестного параметра θ называют такой числовой интервал $(\underline{T}_n, \overline{T}_n)$ внутри которого с заранее установленной вероятностью γ может находиться значение θ , так что

$$P(\underline{T}_n < \theta < \overline{T}_n) = \gamma \quad (8.23)$$

Нижнюю \underline{T}_n и верхнюю \overline{T}_n границы доверительного интервала называют *доверительными границами*. Доверительные границы определяются как функции от результатов n измерений, составляющих выборочную совокупность, и, вследствие случайного характера выборки, сами — случайные величины. Поэтому при многократном повторении серии измерений и положение, и ширина доверительных интервалов будут изменяться, однако в $100 \cdot \gamma$ % случаев доверительные интервалы будут покрывать истинное значение оцениваемого параметра. Вероятность γ того, что интервал $(\underline{T}_n, \overline{T}_n)$ содержит в себе истинное значение параметра, называется *доверительной вероятностью*, а величина

$$1 - \gamma = p \quad (8.24)$$

— *уровнем значимости*. Уровень значимости показывает, насколько часто при повторении выборки наше суждение (например, что значение генерального параметра лежит в пределах доверительного интервала) будет оказываться ошибочным. Доверительные интервалы строят обычно для 95%-ной доверительной вероятности ($\gamma = 0,95$; $p = 0,05$) или для 99%-ной доверительной вероятности ($\gamma = 0,99$; $p = 0,01$). При оценивании генеральных параметров берутся симметрично построенные доверительные интервалы, для которых выполняются соотношения

$$P(\theta < \underline{T}_n) = P(\theta > \overline{T}_n) = \frac{1 - \gamma}{2} \quad (8.25)$$

Таким образом, задача построения доверительного интервала (8.23) сводится к нахождению нижней и верхней доверительных границ, удовлетворяющих требованию (8.25).

Итак, чем больше значение γ , тем выше надежность оценки, но тем больше и ширина доверительного интервала, характеризующая погрешность оценивания. Таким образом, для того чтобы охарактеризовать случайную погрешность измерений, необходимо указать ширину доверительного интервала и доверительную вероятность. Указание одного только доверительного интервала лишено смысла, поскольку его размер зависит от принятого уровня доверительной вероятности. Строя доверительный интервал для μ на основании отдельного измерения, иногда исходят из того, что результат этого измерения взят из генеральной совокупности с нормальным законом распределения. Вообще, чтобы найти доверительный интервал для генерального параметра на основании какой-либо выборочной характеристики, нужно знать закон распределения этой

характеристики. Рассмотрим методы нахождения доверительных интервалов для генерального среднего на основании выборочного среднего. Чтобы построить доверительный интервал для μ исходя из \bar{x} , необходимо знать закон распределения средних арифметических. В зависимости от того, располагает ли исследователь знанием генеральной дисперсии σ^2 , или ему известна лишь ее выборочная оценка s^2 , распределение величин x подчиняется различным законам. Эти законы изучены для выборок из нормальных совокупностей, с которыми чаще всего приходится иметь дело на практике. Средние арифметические \bar{x} для выборок, которые содержат n элементов, взятых из нормальной совокупности с параметрами μ и σ^2 , также подчиняются нормальному распределению с тем же самым значением генерального среднего μ и генеральной дисперсией σ_x^2 , равной

$$\sigma_x^2 = \sigma^2 / n \quad (8.26)$$

Введем вместо случайной величины \bar{x} *нормированную случайную величину*

$$z = \frac{\bar{x} - \mu}{\sigma_{\bar{x}}} = \frac{\bar{x} - \mu}{\sigma / \sqrt{n}} \quad (8.27)$$

Величина z распределена по нормальному закону с параметрами $\mu_z = 0$ и $\sigma_z^2 = 1$. Пользуясь таблицами нормального распределения можно найти два таких числа — $-u_\gamma$ и $+u_\gamma$, для которых выполняется условие

$$P = \left(-u_\gamma < \frac{\bar{x} - \mu}{\sigma / \sqrt{n}} < +u_\gamma \right) = \gamma \quad (8.28)$$

Решая неравенство (28) относительно μ , находим

$$P \left(\bar{x} - u_\gamma \frac{\sigma}{\sqrt{n}} < \mu < \bar{x} + u_\gamma \frac{\sigma}{\sqrt{n}} \right) = \gamma \quad (8.29)$$

Соотношением (8.29), можно пользоваться для интервального оценивания генерального среднего в тех случаях, когда известно значение генеральной дисперсии σ^2 . Если значение σ^2 не известно, то распределение среднего арифметического отличается от нормального, особенно сильно в тех случаях, когда число измерений n мало. Это обусловлено появлением дополнительного источника неопределенности, связанного с тем, что вместо величины σ^2 приходится пользоваться ее выборочной оценкой s^2 , вычисляемой по формулам (8.4) или (8.5), и вместо σ_x^2 — выборочной дисперсией среднего арифметического s_x^2 , которая, по аналогии с (8.26), определяется выражением

$$s_x^2 = \frac{s^2}{n} \quad (8.30)$$

В этом случае при построении доверительных интервалов исходят из так называемого *распределения Стьюдента*, или t-распределения. Это распределение имеет случайная величина

$$t = \frac{\bar{x} - \mu}{s_{\bar{x}}} = \frac{\bar{x} - \mu}{s / \sqrt{n}} \quad (8.31)$$

Распределение Стьюдента зависит только от числа степеней свободы $f=n-1$, связанного с выборочной дисперсией s^2 . Кривые распределения Стьюдента напоминают по форме кривые нормального распределения, но для малых значений f они значительно медленнее сближаются с осью абсцисс при $|t| \rightarrow \infty$. При $f \rightarrow \infty$ t-распределение совпадает с нормальным. Вероятность того, что при доверительной вероятности γ случайная величина попадет в симметричный интервал с доверительными границами $(-t_\gamma, +t_\gamma)$, определяется выражением

$$P\left(-t_\gamma < \frac{\bar{x} - \mu}{s/\sqrt{n}} < +t_\gamma\right) = \gamma \quad (8.32)$$

Решая неравенства (32) относительно μ , получим

$$P\left(\bar{x} - t_\gamma \frac{s}{\sqrt{n}} < \mu < \bar{x} + t_\gamma \frac{s}{\sqrt{n}}\right) = \gamma \quad (8.33)$$

Этим соотношением следует пользоваться для интервального оценивания генерального среднего в тех случаях, когда неизвестно значение генеральной дисперсии σ^2 . Величины

$$u_\gamma \frac{\sigma}{\sqrt{n}} \text{ и } t_\gamma \frac{s}{\sqrt{n}} \quad (34)$$

называют *доверительными погрешностями*, или *погрешностями среднего арифметического при доверительной вероятности γ* и обозначают символом Δ_γ . Таким образом, результат измерений следует записывать в виде

$$\bar{x} \pm \Delta_\gamma \quad (8.35)$$

указывая при этом принятый уровень доверительной вероятности γ . Относительные погрешности среднего арифметического при доверительной вероятности γ будем обозначать символом δ_γ .

Критерий Стьюдента может быть использован для сопоставления выборочного среднего двух серий измерений. Для этого необходимо рассчитать средние скорости счета препарата в каждой серии и выборочные дисперсии отдельного измерения для каждой серии препаратов. Далее по формуле

$$(s^2)_{cp} = \frac{(n_1 - 1)s_{I_1}^2 + (n_2 - 1)s_{I_2}^2}{n_1 + n_2 - 2} \quad (8.35a)$$

необходимо рассчитать среднее взвешенное дисперсий двух измерений. Число степеней свободы здесь $f=n_1+n_2-2$.

Затем рассчитывают величину

$$t_{эксн} = \frac{\bar{I}_1 - \bar{I}_2}{\sqrt{(s^2)_{cp}}} \sqrt{\frac{n_1 n_2}{n_1 + n_2}} \quad (8.35б)$$

Если найденное значение $t_{эксн}$ по абсолютной величине превышает табличное для 1% уровня значимости, то гипотеза о равенстве генеральных средних отбрасывается. Это означает, что разность между средними значениями скорости счета настолько велика, что не может быть объяснена случайными колебаниями.

ми этих величин. Гипотеза ставится под сомнение, если найденное превышает табличное значение для 5% уровня значимости.

8.4. Проверка гипотезы о пуассоновском характере распределения результатов измерения радиоактивности

Доверительный интервал можно рассматривать как интервал значений исследуемого параметра, совместимых с опытными данными и не противоречащих им. Иными словами, событие с вероятностью γ (закрывающееся, например, в том, что значение генерального параметра находится внутри доверительного интервала) считают практически достоверным, а событие с вероятностью $1-\gamma = p$ – практически невозможным. Эти положения лежат в основе проверки статистических гипотез. Правила, устанавливающие условия, при которых проверяемую гипотезу следует отвергнуть либо отвергать не следует, называют *статистическим критерием*. Статистические критерии базируются на определенных функциях от выборочных параметров, для которых известны точные законы распределения. Процедура статистической проверки гипотез предусматривает выбор соответствующей функции и построение доверительного интервала для значений этой функции в предположении, что верна проверяемая гипотеза. Границы доверительного интервала являются критическими точками для принятого уровня значимости: если найденное из опыта значение функции E от элементов выборки окажется больше критического значения $E_{кр}$, то проверяемую гипотезу отвергают. Обычно ориентируются на 5%-ный уровень значимости ($p = 0,05$). Для проверки гипотезы о том, что результаты измерения активности подчиняются распределению Пуассона, используется так называемое χ^2 -распределение. Это распределение имеет случайная величина

$$\chi^2 = (n-1) \frac{s^2}{\sigma^2} \quad (8.36)$$

которую можно получить на основании выборки из n элементов, взятых из нормальной совокупности. Как и распределение Стюдента, распределение величины (8.36) зависит только от числа степеней свободы $f = n - 1$. Вероятность того, что случайная величина (8.36) превысит некоторое предельное значение χ_p^2 , определяется установленным уровнем значимости

$$P(\chi^2 > \chi_p^2) = p \quad (8.37)$$

Чтобы оценить степень близости наблюдаемого распределения результатов измерения активности к распределению Пуассона, подсчитывают величину χ^2 подставляя в (8.36) выборочную дисперсию s_I^2 , $\sigma_{пуасс}^2 = (\bar{I}/t)$ и $f = n - 1$:

$$\chi^2 = (n-1) \frac{s_I^2}{\bar{I}/t} \quad (8.38)$$

Если найденное таким образом экспериментальное значение χ^2 ($\chi_{эксп}^2$) превышает критическое значение для 5%-ного уровня значимости при числе степеней свободы f ,

$$\chi_{эксп}^2 > \chi_{0,05}^2(f)$$

то расхождение между эмпирическим и теоретическим (пуассоновским) распределением признают существенным. Отклонение распределения числа регистрируемых импульсов от закона Пуассона свидетельствует о наличии случайных погрешностей, не связанных со статистическим характером распада. В этом случае оценку генерального среднего скорости счета необходимо проводить с помощью t -распределения на основании выборочного среднего квадратического отклонения s^2 , т. е. строить доверительный интервал вида (8.32).

Если $\chi^2_{\text{эксп}} < \chi^2_{0.05}(f)$, то считают, что нет оснований отвергнуть предположение о том, что число импульсов, регистрируемых детектором за время отдельного измерения, распределено в соответствии с законом Пуассона. Стало быть, рассеяние результатов обусловлено только статистическим характером радиоактивного распада, а другие случайные погрешности, которые в зависимости от постановки эксперимента могут быть связаны с аппаратными факторами, процедурой измерений, методикой приготовления препаратов и т. п., отсутствуют. В этом случае для оценки генерального среднего следует использовать нормальное распределение и строить доверительный интервал вида (8.29), подставляя в указанную формулу значения $\sigma_{\text{пуасс}}(I)$ из (8.19).

Ф-критерий (критерий Фишера)

При обработке экспериментальных результатов в ряде случаев возникает необходимость сравнения выборочных дисперсий. Выдвигаемой при этом гипотезой является соответствие выборочных дисперсий одной генеральной. Т.е., если s_1^2 и s_2^2 - дисперсии, полученные при обработке двух серий наблюдений, то проверяется гипотеза, что $\sigma_1^2 = \sigma_2^2$. Чтобы отвергнуть гипотезу, нужно доказать, что s_1^2 и s_2^2 значительно различаются при выбранном уровне значимости.

В качестве критерия используется случайная величина $F = \frac{s_1^2}{s_2^2}$. Распределение

случайной величины F при данном уровне значимости зависит только от степеней свободы f_1 и f_2 , по которым подсчитывались выборочные дисперсии.

При этом $F(f_1, f_2) = \frac{1}{F(f_2, f_1)}$.

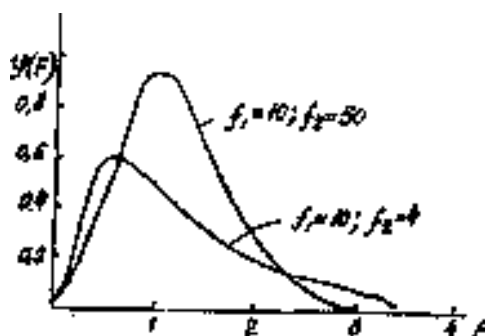


Рис. 8.3. График плотности распределения случайной величины F

В таблицах приводится значение F для различных степеней свободы (f_1 , и f_2) при разных уровнях значимости. На рис. показан график плотности распределения F – критерия при различных f_1 , и f_2 .

Для оценки расхождения между двумя дисперсиями рассчитывают величину $F = s_1^2/s_2^2$ делением большей дисперсии на меньшую.

f_1 - число степеней свободы всегда связано с большей дисперсией. Далее возможны два различных варианта.

1. если априори неизвестно, какая из генеральных дисперсий должна быть больше в случае их неравенства, используют двусторонние доверительные границы. Гипотеза о равенстве генеральных дисперсий отвергается с пятипроцентным уровнем значимости, если $F_{эксн}$ превышает табличное значение для 2,5-процентного уровня значимости.

2. Если известно, что σ_1^2 не может быть меньше σ_2^2 .используется односторонняя доверительная граница. Гипотеза о равенстве σ_1^2 и σ_2^2 . отвергается с 5-процентным уровнем значимости, если $F_{эксн}$ превышает табличное значение для 5-процентного уровня значимости.

При одном и том же уровне значимости (или, что то же самое, при одной и той же вероятности ошибок первого рода) односторонние критерии имеют намного меньшую вероятность ошибок второго рода, т.е. принятия гипотезы, в то время как она не верна. Поэтому перед проверкой статистических гипотез необходимо тщательно проанализировать ситуацию с тем, чтобы выяснить, можно ли воспользоваться более чувствительным односторонним критерием, или постановка задачи допускает применение лишь двусторонних критериев.

8.5. Оценка точности результатов косвенных измерений. Закон накопления погрешностей

До сих пор речь шла о результатах *непосредственных*, или *прямых*, измерений, т. е. таких измерений, при которых непосредственно определяется интересующая нас величина. В экспериментальной работе редко удается ограничиться выполнением прямых измерений, чаще проводятся *косвенные* измерения, при которых подлежащая определению величина представляет собой некоторую функцию от непосредственно измеряемых величин, отягощенных случайными погрешностями. При измерении скорости счета образца непосредственно определяют суммарную скорость счета препарата с фоном и скорость счета фона. При экспериментальном определении коэффициента регистрации η находят отношение скоростей счета образцов, измеренных на данной установке, к их абсолютной активности, определяемой с помощью 4π -счетчика. В подобных случаях возникает задача оценки погрешностей косвенных измерений. Среднее арифметическое и погрешность результата косвенных измерений можно вычислять двояко. Во-первых, можно воспользоваться методами, применяемыми для оценки погрешностей непосредственных измерений. Предположим, что нас интересует некоторая величина Y , связанная функциональной зависимостью с величинами X_1 и X_2 , которые определяются в результате прямых измерений: $Y=g(X_1, X_2)$ Пусть процедура измерений организована так, что каждому измере-

нию величины X_1 соответствует измерение величины X_2 (например, при определении регистрируемой активности препарата чередуют измерения препарата с фоном и фона по схеме: препарат — фон, препарат— фон и т. д.). Тогда по данным каждой пары измерений — x_{1i} и x_{2i} можно рассчитать величину $y_i = g(x_{1i}, x_{2i})$ и обычными методами найти среднее арифметическое и погрешность результата косвенных измерений, а также рассчитать доверительные интервалы. Нередко требуется оценить среднее значение и погрешность функции случайных величин, зная лишь средние значения и погрешности независимых переменных. Тогда необходим другой путь расчета среднего арифметического и погрешности результата косвенных измерений, основанный на использовании закона накопления погрешностей. В соответствии с этим законом среднее значение и выборочную дисперсию величины Y , которая представляет собой функцию K независимых случайных величин X_i

$$Y = g(X_1, X_2, \dots, X_k) \quad (8.39)$$

можно аппроксимировать выражениями:

$$Y = g(\overline{X_1}, \overline{X_2}, \dots, \overline{X_k}) \approx g(\overline{X_1}, \overline{X_2}, \dots, \overline{X_k});$$

$$s_Y^2 = s_{g(X_1, X_2, \dots, X_k)}^2 = \left(\frac{\partial Y}{\partial X_1} \right)^2 s_{X_1}^2 + \left(\frac{\partial Y}{\partial X_2} \right)^2 s_{X_2}^2 + \dots + \left(\frac{\partial Y}{\partial X_k} \right)^2 s_{X_k}^2 \quad (8.40)$$

В последнем выражении $s_{X_1}^2, s_{X_2}^2, \dots, s_{X_k}^2$ — выборочные дисперсии случайных величин X_1, X_2, \dots, X_k . Заметим, что соотношение (8.40) сохраняет силу и в тех случаях, когда вместо выборочных дисперсий в него подставляют генеральные дисперсии $\sigma_{X_j}^2$ или квадраты погрешностей, вычисленных при выбранном уровне доверительной вероятности $\Delta_{\gamma(X_j)}^2$.

Относительную погрешность результата косвенных измерений можно вычислить по обычной формуле, подобной (6). Бывают случаи, когда легче сразу определить относительную погрешность функции ряда случайных величин. Почленно разделив уравнение на Y^2 и замечая, что

$$\frac{1}{Y} \frac{\partial Y}{\partial X} = \frac{\partial}{\partial X} (\ln Y)$$

получим выражение для относительного выборочного квадратического отклонения результата косвенных измерений:

$$\delta_Y^2 = \delta_{g(X_1, X_2, \dots, X_k)}^2 = \left(\frac{\partial}{\partial X_1} (\ln Y) \right)^2 s_{X_1}^2 + \left(\frac{\partial}{\partial X_2} (\ln Y) \right)^2 s_{X_2}^2 + \dots + \left(\frac{\partial}{\partial X_k} (\ln Y) \right)^2 s_{X_k}^2 \quad (8.41)$$

В это соотношение вместо выборочных дисперсий можно подставить генеральные дисперсии σ^2 (тогда получится выражение для относительного генерального квадратического отклонения υ) или квадраты доверительных погрешностей $\Delta_{\gamma(X_j)}^2$ (тогда получится выражение для относительной погрешности значения Y , соответствующей выбранному уровню доверительной вероятности, δ_γ). Если относительная погрешность вычислена по формуле (8.41), то не имеет

смысла прибегать к прямому расчету абсолютной погрешности по формуле (8.40) — ее удобнее определять из очевидного соотношения

$$s_Y = \bar{Y}\delta_Y \quad (8.42)$$

Нетрудно убедиться, что для функций вида

$$Y = \frac{X_1 X_2}{X_3} \quad (8.43)$$

относительное выборочное квадратическое отклонение равно

$$\delta_Y = \sqrt{\delta_{X_1}^2 + \delta_{X_2}^2 + \delta_{X_3}^2} \quad (8.44)$$

Напомним основные уравнения математической статистики:

| | |
|------------------------------------|--|
| $u=u(x,y,z, \dots)$ | $\sigma_u^2 = \left(\frac{\partial u}{\partial x}\right)^2 \sigma_x^2 + \left(\frac{\partial u}{\partial y}\right)^2 \sigma_y^2 + \left(\frac{\partial u}{\partial z}\right)^2 \sigma_z^2 + \dots$ |
| $u=x+y$ | $\sigma_u = \sqrt{\sigma_x^2 + \sigma_y^2}$ |
| $u=x-y$ | $\sigma_u = \sqrt{\sigma_x^2 + \sigma_y^2}$ |
| $u=C \cdot x \quad C=\text{const}$ | $\sigma_u = C \cdot \sigma_x$ |
| $u=x/C \quad C=\text{const}$ | $\sigma_u = \sigma_x / C$ |
| $u=xy$ | $\sigma_u = xy \sqrt{\left(\frac{\sigma_x}{x}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_y}{y}\right)^2}$ |
| $u=\frac{x}{y}$ | $\sigma_u = \frac{x}{y} \sqrt{\left(\frac{\sigma_x}{x}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_y}{y}\right)^2}$ |

8.6. Выбор оптимальной продолжительности измерений препарата с фоном и фона

Точность определения скорости счета препарата за вычетом фона зависит от того, каким образом общее время измерения $t = t_c + t_\phi$ распределено между измерением препарата с фоном и измерением фона. Поэтому возникает задача выбора оптимального соотношения между временем измерения препарата с фоном и временем измерения фона, которое обеспечивало бы минимальную величину погрешности в определении скорости счета препарата при фиксированном t . Рассмотрим выражение для абсолютной квадратической флуктуации скорости счета препарата за вычетом фона (в предположении, что рассеяние результатов обусловлено только статистическим характером распада и колебаний фона)

$$\sigma_{\text{нуасс}}(I) = \sqrt{\sigma_{\text{нуасс}}^2(I_c) + \sigma_{\text{нуасс}}^2(I_\phi)} = \sqrt{\frac{I_c}{t_c} + \frac{I_\phi}{t_\phi}} \quad (8.45)$$

Продифференцируем (8.45):

$$d\sigma_{nyacc(I)} = \frac{1}{2\sigma_{nyacc(I)}} \left(-\frac{I_c}{t_c^2} dt_c - \frac{I_\phi}{t_\phi^2} dt_\phi \right) \quad (8.46)$$

Используя условие минимума погрешности $\sigma_{nyacc(I)} = 0$, имеем

$$-\frac{I_c}{t_c^2} dt_c - \frac{I_\phi}{t_\phi^2} dt_\phi = 0 \quad (8.47)$$

Так как общая продолжительность измерений постоянна, то

$$dt_c + dt_\phi = 0$$

Подставляя $dt_c = -dt_\phi$ в (8.47), находим

$$\frac{t_c}{t_\phi} = \frac{\sqrt{I_c}}{\sqrt{I_\phi}} \quad (8.48)$$

Используя полученное соотношение, можно рассчитать продолжительность измерений препарата с фоном и фона, необходимую для того, чтобы погрешность скорости счета препарата не превышала заданной величины. Пусть задана относительная флуктуация скорости счета при доверительной вероятности γ , равная

$$\delta_{\gamma(I_c - I_\phi)} = u_\gamma \frac{\sqrt{\frac{I_c}{t_c} + \frac{I_\phi}{t_\phi}}}{I_c - I_\phi} \quad (8.49)$$

Эта формула получается путем деления выражения (8.45) на $I = I_c - I_\phi$ и умножения на коэффициент u_γ , соответствующий принятому уровню доверительной вероятности. Возводя в квадрат обе части (8.49) и используя соотношение (8.48) для подстановок

$$t_\phi = t_c \frac{\sqrt{I_\phi}}{\sqrt{I_c}}; \quad t_c = t_\phi \frac{\sqrt{I_c}}{\sqrt{I_\phi}} \quad (8.50)$$

после несложных преобразований найдем:

$$t_c = u_\gamma^2 \frac{I_c + \sqrt{I_c I_\phi}}{\delta_\gamma^2 (I_c - I_\phi)^2}; \quad t_\phi = u_\gamma^2 \frac{I_\phi + \sqrt{I_c I_\phi}}{\delta_\gamma^2 (I_c - I_\phi)^2} \quad (8.51)$$

Подчеркнем, что входящая в эти равенства величина δ_γ^2 выражена в долях единицы. С помощью формул (8.51) искомую продолжительность измерений препарата с фоном t_c и фона t_ϕ находят следующим образом. Грубо измеряют в течение 1 мин скорости счета препарата с фоном и фона. Значения I_c , I_ϕ , а также u_γ , соответствующее выбранному уровню доверительной вероятности u , и заданное δ_γ^2 подставляют в формулы (8.51). Вычисленные значения t_c и t_ϕ округляют до целого числа минут (обычно с избытком) и производят точные измерения в течение этих периодов времени.

Если полученное расчетное время измерения достаточно велико, то можно разбить его на несколько промежутков равной величины. Конечно, в отсутствие других источников погрешностей, кроме статистического характера распада и колебаний фона, увеличение числа измерений при сохранении их общей продолжительности не будет влиять на точность результатов. Тем не менее, такое разбиение может оказаться полезным хотя бы для проверки пуассоновского характера распределения результатов. В том, что препарат измерен с заданной точностью, можно убедиться, обрабатывая результаты измерений по формуле (8.49).

Пример. В результате предварительного определения скорости счета препарата с фоном и фона были получены значения $I_c=1300$ имп/мин и $I_\phi=47$ имп/мин. Рассчитаем продолжительность измерений препарата с фоном и фона, необходимую для того, чтобы относительная флуктуация скорости счета препарата при доверительной вероятности $\gamma = 0,95$ не превышала 3%. Подставляя I_c , I_ϕ , $\delta_{0,95}=0,03$ и $u_{0,95} = 1,96$ в формулы (8.51), находим:

$$t_c = 1,96^2 \frac{1300 + \sqrt{1300 \cdot 47}}{0,03^2 (1300 - 47)^2} = 3,84 \frac{1300 + 247}{9 \cdot 10^{-4} \cdot 1,57 \cdot 10^6} = 4,2 \text{ мин} \approx 5 \text{ мин};$$

$$t_\phi = 1,96^2 \frac{47 + \sqrt{1300 \cdot 47}}{0,03^2 (1300 - 47)^2} = 3,84 \frac{47 + 247}{9 \cdot 10^{-4} \cdot 1,57 \cdot 10^6} = 0,8 \text{ мин} \approx 1 \text{ мин}.$$

8.7. Функция для выбора оптимального режима работы радиометрической аппаратуры

Если счетная характеристика используемого детектора *не имеет плато* (как это бывает, например, при работе со сцинтилляционными счетчиками), то возникает задача выбора рабочего режима, который обеспечивал бы оптимальность регистрации излучения. Эта задача осложняется тем, что *само понятие оптимального режима часто определяется неоднозначно*. Рассмотрим наиболее общий подход к проблеме выбора оптимальных условий работы радиометрической аппаратуры. В экспериментальной работе стремятся получить результаты с наибольшей точностью, которая может быть достигнута при данных условиях эксперимента. Поэтому *представляется естественным принять за оптимальный такой режим работы счетчика, при котором (при фиксированном общем времени измерения препарата с фоном и фона) погрешность измерения скорости счета препарата за вычетом фона была бы минимальна*. Если продолжительности измерения препарата с фоном t_c и фона t_ϕ выбраны в соответствии с формулами (8.51), то общее время измерения равно

$$t = t_c + t_\phi = \frac{u_\gamma^2}{\delta_\gamma^2} \cdot \frac{I_c + 2\sqrt{I_c I_\phi} + I_\phi}{(I_c + I_\phi)^2} = \frac{u_\gamma^2}{\delta_\gamma^2} \cdot \frac{1}{(\sqrt{I_c} - \sqrt{I_\phi})^2} \quad (8.52)$$

откуда

$$\frac{u_\gamma^2}{\delta_\gamma^2 t} = (\sqrt{I_c} - \sqrt{I_\phi})^2 \quad (8.53)$$

Это выражение связывает относительную флуктуацию скорости счета препарата за вычетом фона δ_γ и общую продолжительность измерений препарата с фоном и фона t с суммарной скоростью счета препарата вместе с фоном I_c и скоростью счета фона I_ϕ (u_γ – постоянный коэффициент, соответствующий принятому уровню доверительной вероятности γ). Для выбора оптимального режима работы радиометрической аппаратуры используют функцию

$$K = (\sqrt{I_c} - \sqrt{I_\phi})^2 \quad (8.54)$$

Рассчитывают величину K для разных режимов и **выбирают в качестве рабочего тот режим, при котором K достигает максимума**. Достоинством функции оптимизации K является ее универсальность: как видно из сопоставления (53) и (54), при максимальном значении K обеспечивается минимальная погрешность в определении I при заданной общей продолжительности измерений и, наоборот, минимальное общее время измерения при заданной погрешности.

Пример. При постоянном коэффициенте усиления и напряжении па ФЭУ искали оптимальное значение порога дискриминации для сцинтилляционного счетчика. Полученные при этом данные представлены в таблице

Зависимость скорости счета от уровня дискриминации

| Уровень дискриминации, U_d , В | Скорость счета препарата вместе с фоном, I_c , имп/мин | Скорость счета фона I_ϕ , имп/мин |
|-------------------------------------|---|---|
| 5 | 10 070 | 1301 |
| 6 | 8 155 | 357 |
| 7 | 8 064 | 315 |
| 8 | 7 495 | 338 |

Определим оптимальный порог дискриминации.

$$U_d = 5\text{В} \quad K = (\sqrt{10070} - \sqrt{1301})^2 = (100,3 - 36,1)^2 = 4122;$$

$$U_d = 6\text{В} \quad K = (\sqrt{8155} - \sqrt{357})^2 = (90,3 - 18,9)^2 = 5098;$$

$$U_d = 7\text{В} \quad K = (\sqrt{8064} - \sqrt{315})^2 = (89,8 - 17,8)^2 = 5184;$$

$$U_d = 8\text{В} \quad K = (\sqrt{7495} - \sqrt{338})^2 = (86,6 - 18,4)^2 = 4651.$$

Таким образом, в качестве оптимального (рабочего) значения порога дискриминации следует выбрать $U_d = 7$ В.

8.8. Обработка результатов эксперимента

При проведении работ с использованием радиоактивных индикаторов следует иметь в виду, что систематические и случайные погрешности, возникающие на различных этапах эксперимента, могут значительно превышать как погрешности, обусловленные статистическим характером распада, так и суммарные погрешности радиометрических определений. Возможны также погрешности, которые в экспериментах, проводимых в строго одинаковых условиях, выступают как систематические, а при варьировании условий эксперимента — как случайные. Объективная оценка точности и надежности получаемых данных может быть найдена только в результате повторения всего эксперимента в несколько различающихся условиях (например, при определении растворимости следует варьировать время контакта осадка с раствором, условия разделения фаз, величину удельной активности исходного меченого соединения и т. п.). На основании результатов параллельных экспериментов рассчитывают среднее и дисперсию и находят погрешность среднего арифметического при заданной доверительной вероятности. Если параллельные опыты выполняются в одних и тех же условиях, то нужно иметь в виду, что получаемая на основании этих данных оценка точности будет характеризовать лишь минимальный уровень рассеяния значений определяемой величины.

В тех случаях, когда невозможно повторение всего эксперимента от начала до конца, выполняют параллельные определения на отдельных этапах работы и оценивают точность окончательного результата с помощью закона накопления погрешностей. При этом погрешность результата косвенных измерений также может оказаться заниженной, если не были учтены какие-либо источники рассеяния. Тем не менее, оценка погрешности результата на основании закона накопления погрешностей бывает очень полезна, так как позволяет выявить те экспериментальные операции, которые приводят к наиболее значительному рассеянию результатов.

Чтобы снизить погрешность результата косвенных измерений, при выполнении этих операций следует увеличивать число параллельных либо добиться уменьшения погрешностей отдельного измерения путем усовершенствования методики работы. Закон накопления погрешностей целесообразно использовать и на стадии планирования эксперимента, когда предстоит выбрать методику, которая давала бы наиболее точные результаты.

Когда определяющими являются погрешности радиометрических определений, важно выяснить, отсутствуют ли погрешности, не связанные со статистическим характером радиоактивного распада. Такие погрешности могут возникать на самых различных этапах экспериментальной работы; они нарушают пуассоновский характер распределения результатов измерения радиоактивности. Поэтому обязательно проверяют, можно ли считать, что результаты измерения активности распределены по закону Пуассона. Последовательность операций при измерениях может различаться в зависимости от условий проведения эксперимента. Опишем две наиболее характерные ситуации.

Ситуация 1. Измеряется серия препаратов, приготовленных одним и тем же способом на разных стадиях эксперимента или в различных экспериментах.

Для проверки гипотезы о пуассоновском характере распределения результатов измерений радиоактивности проводят ~ 10 измерений скорости счета (вместе с фоном) одного из препаратов, каждый раз поворачивая его на некоторый случайный угол. Если с помощью χ^2 -критерия показано, что нет оснований отвергнуть предположение о распределении результатов в соответствии с законом Пуассона, то для остальных препаратов рассчитывают оптимальную продолжительность измерений, необходимую для того, чтобы при доверительной вероятности γ относительная флуктуация $\delta_{\gamma(I)}$ не превышала заданной величины. Можно поступить иначе – приготовить препарат с такой скоростью счета, чтобы при фиксированном времени измерения была достигнута требуемая точность регистрации. Скорость счета препарата находят, задаваясь величиной фона, временем измерения и относительной флуктуацией скорости счета при доверительной вероятности γ , $\delta_\gamma = \delta_{\gamma(I)}$:

$$I_c = \left(\frac{u_\gamma}{\delta_\gamma \sqrt{t}} + \sqrt{I_\phi} \right)^2 \quad (8.55)$$

Выполнив измерения регистрируемой активности в течение требуемого времени, рассчитывают погрешности средних значений скоростей счета при доверительной вероятности u . Если единственным источником рассеяния является статистический характер радиоактивного распада, то погрешности равны

$$\begin{aligned} \Delta_{\gamma(I_c)} &= \pm u_\gamma \frac{\sigma_{\text{пуасс}}(I_c)}{\sqrt{n_c}} = \pm u_\gamma \sqrt{\frac{\bar{I}_c}{n_c t_c}}; \\ \Delta_{\gamma(I_\phi)} &= \pm u_\gamma \frac{\sigma_{\text{пуасс}}(I_\phi)}{\sqrt{n_\phi}} = \pm u_\gamma \sqrt{\frac{\bar{I}_\phi}{n_\phi t_\phi}}; \\ \Delta_{\gamma(I_c - I_\phi)} &= \pm u_\gamma \sqrt{\Delta_{\gamma(I_c)}^2 + \Delta_{\gamma(I_\phi)}^2} = \pm u_\gamma \sqrt{\frac{\bar{I}_c}{n_c t_c} + \frac{\bar{I}_\phi}{n_\phi t_\phi}} \end{aligned} \quad (8.56)$$

где n_c и n_ϕ — число измерений препарата с фоном и фона. Если $n_c = n_\phi = n$, то

$$\Delta_{\gamma(I_c - I_\phi)} = \pm u_\gamma \sqrt{\frac{\sigma_{\text{пуасс}}^2(I_c) + \sigma_{\text{пуасс}}^2(I_\phi)}{n}} \quad (8.57)$$

В тех случаях, когда использование критерия χ^2 показывает, что эмпирическое распределение результатов измерения радиоактивности существенно отличается от распределения Пуассона, нет смысла находить оптимальную продолжительность измерений или готовить препарат с заданной скоростью счета. Достаточно провести несколько (чем больше, тем лучше) измерений каждого препарата и фона продолжительностью по 1 мин. Естественно, что для того препарата, который использовали при проверке пуассоновского характера распределения результатов, дальнейшие измерения проводить не

нужно, поскольку для него уже получена достаточно большая выборочная совокупность значений I_c .

Если присутствуют погрешности, не связанные со статистическим характером распада, то погрешность результата оценивают с помощью t -распределения на основании выборочного среднего квадратического отклонения s_I :

$$\begin{aligned}\Delta_{\gamma(I_c)} &= \pm t_{\gamma, f_c} \frac{s_{I_c}}{\sqrt{n_c}}; \\ \Delta_{\gamma(I_\phi)} &= \pm t_{\gamma, f_\phi} \frac{s_{I_\phi}}{\sqrt{n_\phi}}\end{aligned}\tag{8.58}$$

где $t_{\gamma f_c}$ и $t_{\gamma f_\phi}$ — доверительные границы распределения Стьюдента при доверительной вероятности γ и числе степеней свободы $f_c = n_c - 1$ и $f_\phi = n_\phi - 1$.

Погрешность скорости счета препарата за вычетом фона, соответствующую доверительной вероятности γ , рассчитывают по формуле

$$\Delta_{\gamma(I_c - I_\phi)} = \pm \sqrt{\Delta_{\gamma(I_c)}^2 + \Delta_{\gamma(I_\phi)}^2}\tag{8.59}$$

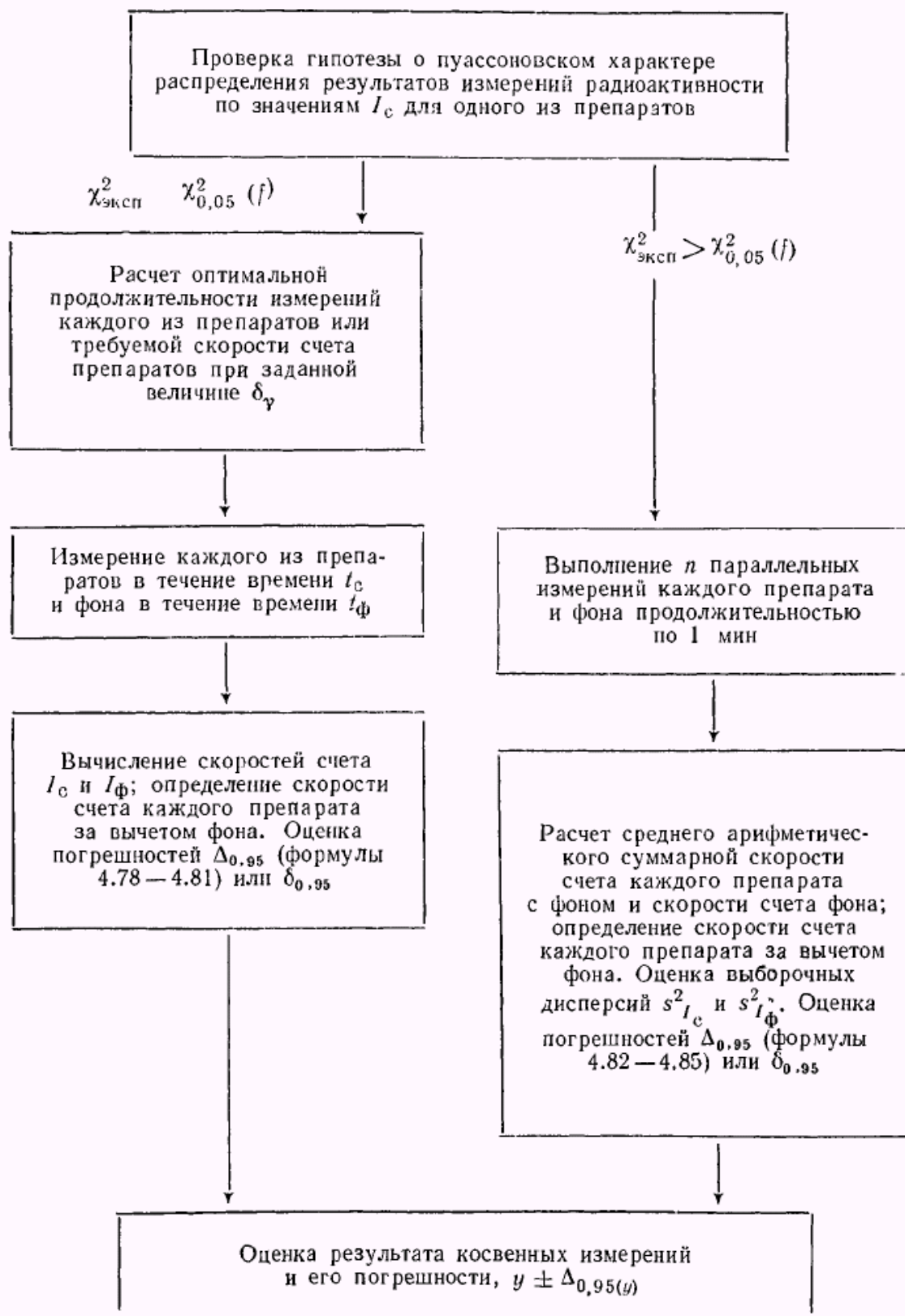
Если число измерений препарата с фоном и фона одинаково,

$$\Delta_{\gamma(I_c - I_\phi)} = \pm t_{\gamma, f} \sqrt{\frac{s_{I_c}^2 + s_{I_\phi}^2}{n}}\tag{8.60}$$

На схеме 1 показана последовательность операций при выполнении радиометрических определений в разобранном случае. Рассмотрим другую ситуацию.

СХЕМА 1

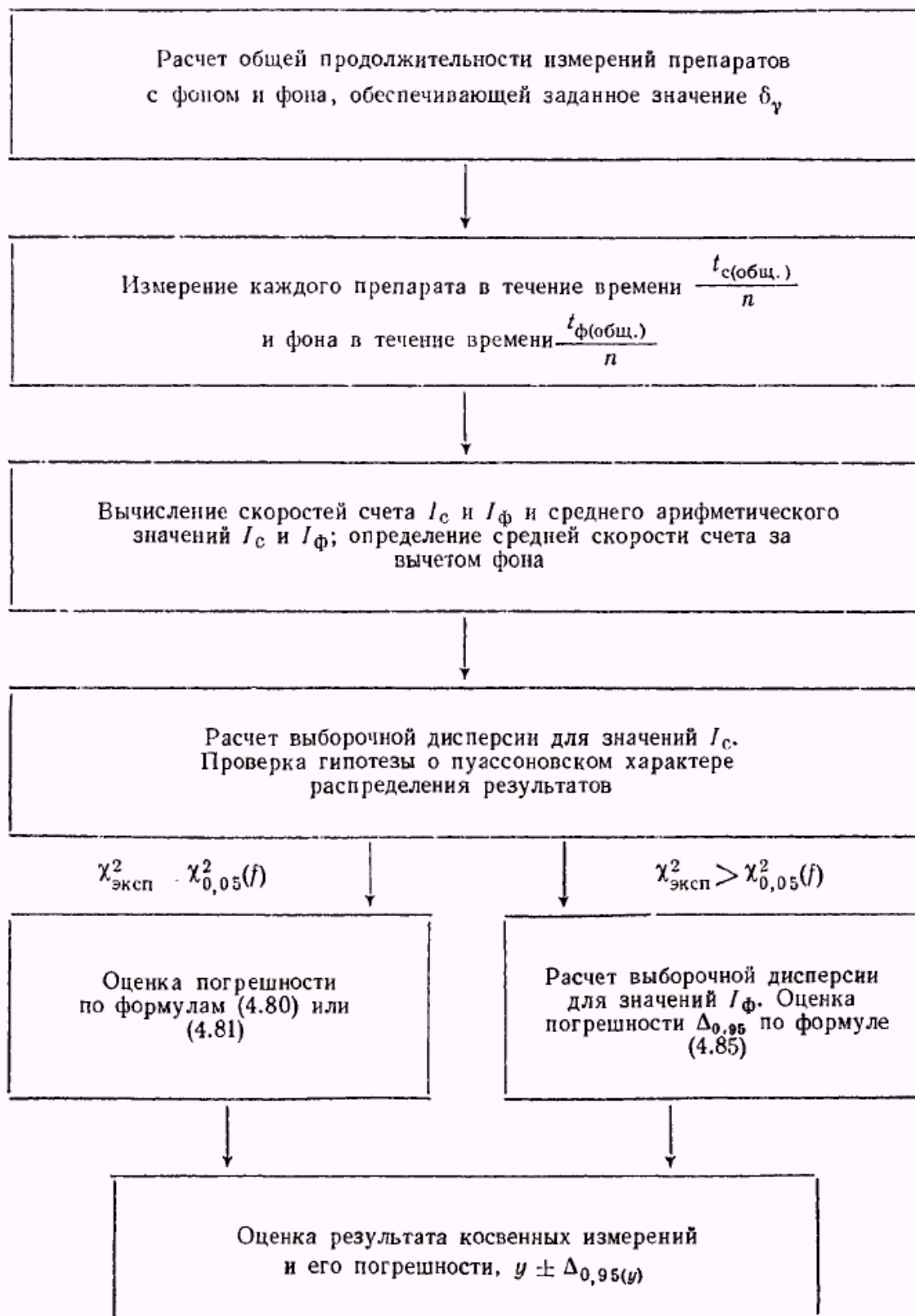
Последовательность операций при измерении радиоактивности серии препаратов, приготовленных в различных опытах



Ситуация 2. Измеряется серия препаратов, приготовленных в одном и том же опыте. Пусть все препараты приготовлены одним и тем же способом из одинаковых объемов радиоактивного раствора (заметим, что число параллельных препаратов n должно быть не менее 3). Тогда поступают следующим образом. Рассчитывают оптимальную общую продолжительность измерений $t_{c(общ)}$ и $t_{ф(общ)}$ при которой обеспечивается требуемое значение относительной флуктуации результата (средней скорости счета препаратов за вычетом фона) $\delta_{\gamma(L)}$. Проводят измерение регистрируемой активности каждого препарата в течение времени $t_c = t_{c(общ)}/n$ и n измерений фона продолжительностью $t_{\phi} = t_{\phi(общ)}/n$ каждое. С помощью χ^2 -критерия проверяют, можно ли считать, что значения I_c распределены в соответствии с законом Пуассона.

Если нет оснований отвергнуть предположение о том, что эмпирическое распределение соответствует пуассоновскому, то оценивают погрешность результата измерений по формулам (8.56) или (8.57). В противном случае для расчета погрешности используют формулу (8.60). На заключительном этапе обработки данных оценивают погрешность результата косвенных измерений. Описанная последовательность операций показана на схеме 2. Следует иметь в виду, что если препараты готовились из различных объемов радиоактивного раствора или были измерены в различных условиях (разные подложки, геометрические коэффициенты и т. п.), то проверить гипотезу о пуассоновском характере распределения результатов нельзя. В этом случае пересчитывают все результаты к одинаковому объему раствора или одинаковым условиям измерения и оценивают погрешность по формулам (8.58) – (8.60).

Последовательность операций при измерении радиоактивности серии из n препаратов, приготовленных в одном опыте



8.9. Оценка погрешности измерений при наличии как неисключенных систематических, так и случайных погрешностей

Обработка результатов наблюдений

Полученные при измерениях результаты подлежат обработке по соответствующим статистическим правилам. Способ обработки экспериментальных данных зависит от вида измерений (прямые, косвенные, совокупные и совместные), числа наблюдений (однократные, многократные измерения), равнозначности.

В процессе обработки результатов наблюдений следует решить следующие задачи:

- установить отсутствие в результатах грубых погрешностей по статистическим критериям и исключить их, если они имеются;
- исключить известные систематические погрешности введением поправки или поправочного множителя;
- проверить наличие функциональных систематических погрешностей и найти способы и возможности их максимального исключения.

Измерения прямые однократные

За результат однократного измерения A принимают значение физической величины, полученное при отдельном измерении.

Составляющие погрешности результата измерения должны быть известны до проведения измерений. Предполагается, что известные систематические погрешности исключены. Однократные измерения имеют место в случае производственной необходимости (разрушение образца, невозможность повторения измерения, экономическая целесообразность и т.д.).

Случайные погрешности считают пренебрежимо малыми по сравнению с неисключенными систематическими, если

$$\frac{\Theta}{\sigma(A)} > 8 \quad (8.61)$$

где Θ - граница неисключенных систематических погрешностей результата измерения; $\sigma(A)$ – среднее квадратическое отклонение случайных погрешностей результата измерения.

Однократные измерения проводятся в тех случаях, когда случайные погрешности существенны, но доверительная граница погрешности результата измерения не превышает допустимой погрешности измерений.

Для определения доверительных границ погрешности результата измерения принимают вероятность, равную 0,95. В особых случаях, например, при измерениях, которые нельзя повторить, допускается указывать доверительные границы для более высоких вероятностей.

Погрешность результата измерения (характеристики погрешности и их статистические оценки) выражается числом, содержащим не более двух значащих цифр. Две значащие цифры следует сохранять, если первые две цифры неокругленного числового значения составляют число менее $25 \cdot 10^n$. В этом случае

третий разряд (не указываемый младший) округляется в большую сторону (например, $0,151 = 0,16$). Одну значащую цифру следует сохранять, если число больше или равно $25 \cdot 10^n$. В этом случае округление производят в большую сторону, если цифра последующего неуказанного младшего разряда равна или больше пяти, или в меньшую сторону, если эта цифра меньше пяти.

Составляющие погрешности результата однократного измерения - это погрешности средств измерений, метода и оператора. Эти погрешности могут состоять из неисключенных систематических и случайных погрешностей. Неисключенные систематические погрешности могут быть выражены либо в виде границ $\pm \Theta$, либо в виде доверительных границ $\pm \Theta(P)$. (В данном разделе для обозначения доверительной вероятности используется буквенное обозначение $P \equiv \gamma$). Случайные погрешности могут быть представлены средним квадратическим отклонением σ или доверительными границами $\pm \Delta_{cp}(P)$.

Погрешности средств измерения определяют по метрологическим характеристикам, которые указаны в нормативно-технической документации, и в соответствии с РД 50-453-84. Погрешности метода ж оператора должны быть определены в нормативно-техническом документе на конкретную методику выполнения измерений.

Оценивание систематической погрешности результата измерения. Если неисключенная систематическая погрешность имела место только у одной из составляющих (погрешности средства измерения, или метода, или оператора), неисключенную систематическую погрешность результата выражают границами этой погрешности.

Доверительные границы неисключенной систематической погрешности результата измерения определяются следующим образом.

При наличии нескольких неисключенных систематических погрешностей, **заданных своими границами Θ_j** используют формулу

$$\Theta(P) = k \sqrt{\sum_{j=1}^m \Theta_j^2} \quad (8.62)$$

где k - поправочный коэффициент, определяемый принятой доверительной вероятностью и числом m составляющих Θ_j . При доверительной вероятности $P = 0,90$ поправочный коэффициент k принимают равным 0,95; при доверительной вероятности $P = 0,95$ $k = 1,1$. При доверительной вероятности $P = 0,99$ поправочный коэффициент принимают равным 1,45, если число суммируемых составляющих $m > 4$. Если число составляющих $m = 4$, поправочный коэффициент $k = 1,4$; при $m = 3$ $k = 1,3$; при $m = 2$ $k = 1,2$.

При наличии нескольких неисключенных систематических погрешностей, **заданных доверительными границами $\Theta_j(P)$** рассчитанными по предыдущей формуле, доверительную границу неисключенной систематической погрешности результата однократного измерения вычисляют по формуле

$$\Theta(P) = k \sqrt{\sum_{j=1}^m \frac{\Theta_j^2(P_i)}{k_i^2}} \quad (8.63)$$

где $\Theta_j^2(P_i)$ – доверительная граница j -й неисключенной систематической погрешности, соответствующая доверительной вероятности P_i ; k и k_i – коэффициенты, соответствующие доверительной вероятности P и P_i соответственно, значения которых определяют в соответствии с принципами изложенными выше.

Оценивание случайной погрешности результата измерения производится следующим образом. Если случайные погрешности средств измерений (метода, оператора) представлены средними квадратическими отклонениями σ_i , приведенными в технической документации, среднее квадратическое отклонение результата однократного измерения $\sigma(A)$ вычисляют по формуле

$$\sigma(A) = \sqrt{\sum_{i=1}^m \sigma_i^2} \quad (8.64)$$

где m - число составляющих.

Доверительную границу случайной погрешности результата измерения $\Delta_{zp}(P)$ вычисляют по формуле

$$\Delta_{zp}(P) = Z_{P/2} \sigma(A) \quad (8.65)$$

где $Z_{P/2}$ - точка нормирования функции Лапласа, отвечающая вероятности P . При доверительной вероятности $P = 0,95$ $Z_{P/2} = 2$, при $P = 0,99$ $Z_{P/2} = 2,6$

Если случайные погрешности средств измерений (метода, оператора) представлены доверительными границами $\Delta_{zpi}(P)$ соответствующими одной и той же вероятности, доверительную границу случайной погрешности результата однократного измерения вычисляют по формуле

$$\Delta_{zp}(P) = \sqrt{\sum_{i=1}^m \Delta_{zpi}^2(P)} \quad (8.66)$$

Если случайные погрешности средств измерений (метода, оператора) представлены доверительными границами, соответствующими разным вероятностям, сначала определяют среднее квадратическое отклонение результата измерения по формуле

$$\sigma(A) = \sqrt{\sum_{i=1}^m \frac{\Delta_{zpi}^2(P_i)}{Z_{Pi/2}^2}} \quad (8.67)$$

а потом вычисляют доверительные границы случайной погрешности результата измерения по формуле

$$\Delta_{zp}(P) = Z_{P/2} \sigma(A) \quad (8.68)$$

Оценивание погрешности результата измерения осуществляют следующим образом:

1. Если погрешности метода и оператора пренебрежимо малы по сравнению с погрешностью используемых средств измерений (не превышают 15 %), за погрешность результата измерения принимают погрешность используемых средств измерений.

2. Если $\Theta/\sigma(A) < 0,8$, неисключенными систематическими погрешностями пренебрегают и принимают в качестве погрешности результата измерения доверительные границы случайных погрешностей.

3. Если $\Theta/\sigma(A) > 8$, случайными погрешностями пренебрегают и принимают в качестве погрешности результата измерения границы неисключенных систематических погрешностей.

4. Если $8 \geq \Theta/\sigma(A) \geq 0,8$, доверительную границу погрешности результата измерений вычисляют по формуле

$$\Delta(P) = k_P [\Theta(P) + \Delta_{sp}(P)] \quad (8.69)$$

где k_P - коэффициент, выбираемый в зависимости от отношения $\Theta/\sigma(A)$ и доверительной вероятности

| $\frac{\Theta}{\sigma(A)}$ | 0,8 | 1 | 2 | 3 | 4 | 5 | 6 | 7 | 8 |
|----------------------------|------|------|------|------|------|------|------|------|------|
| $k_{0,95}$ | 0,76 | 0,74 | 0,71 | 0,73 | 0,76 | 0,78 | 0,79 | 0,80 | 0,81 |
| $k_{0,99}$ | 0,84 | 0,82 | 0,80 | 0,81 | 0,82 | 0,83 | 0,83 | 0,84 | 0,85 |

При симметричной доверительной погрешности результат однократного измерения представляется в форме $A; \pm \Delta; P$ или $A \pm \Delta; P$.

Числовые значения результата измерения должны оканчиваться цифрами того же разряда, что и значение погрешности.

Измерения прямые многократные

При статистической обработке группы результатов наблюдений следует выполнить следующие операции:

- исключить известные систематические погрешности из результатов наблюдений;
- вычислить среднее арифметическое исправленных результатов наблюдений, принимаемое за результат измерения;
- вычислить оценку среднего квадратического отклонения результата наблюдения (*единичного*);
- вычислить оценку среднего квадратического отклонения результата измерения (*всей серии измерений*);
- проверить гипотезу о том, что результаты наблюдений принадлежат нормальному распределению;
- вычислить доверительные границы случайной погрешности (случайной составляющей погрешности) результата измерения;
- вычислить границы неисключенной систематической погрешности (неисключенных остатков систематической погрешности) результата измерения;
- вычислить доверительные границы погрешности результата измерения.

Проверку гипотезы о том, что результаты наблюдений принадлежат нормальному распределению, следует проводить с уровнем значимости p от 10 до 2 %. Значения уровней значимости должны быть указаны в конкретной методике выполнения измерений ($p = 1 - P$).

Для определения доверительных границ погрешности результата измерения доверительную вероятность P принимают равной 0,95. Если измерение нельзя повторить, помимо границ, соответствующих доверительной вероятности $P=0,95$, допускается указывать границы для доверительной вероятности $P=0,99$. В особых случаях, например при измерениях, результаты которых имеют значение для здоровья людей, допускается принимать еще более высокую вероятность.

За результат измерения принимают среднее арифметическое результатов наблюдений, в которые предварительно введены поправки для исключения систематических погрешностей. Кроме того, из ряда результатов наблюдений необходимо исключить результаты, содержащие грубые погрешности. Способы обнаружения грубых погрешностей должны быть указаны в методике выполнения измерений.

Оценку среднего квадратического отклонения результатов **однократный** наблюдений $\bar{\sigma}$ вычисляют по формуле

$$\bar{\sigma} = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^n (a_i - A)^2}{n - 1}} \quad (8.70)$$

где a_i – i -й результат наблюдения; A – результат измерения (среднее арифметическое исправленных результатов наблюдений); n – число результатов наблюдений.

Оценку среднего квадратического отклонения результата **измерения** находят по формуле

$$\bar{\sigma}(A) = \frac{\bar{\sigma}}{\sqrt{n}} \quad (8.71)$$

Доверительные границы случайной погрешности результата измерения устанавливают обычно для результатов наблюдений, принадлежащих нормальному распределению. Если это условие не выполняется, методы вычисления доверительных границ случайной погрешности должны быть указаны в методике выполнения конкретных измерений.

При числе результатов наблюдений $n > 50$ для проверки принадлежности их к нормальному распределению предпочтительным является один из критериев: Пирсона или Мизеса-Смирнова.

При числе результатов наблюдений $50 > n > 15$ для проверки принадлежности их к нормальному распределению предпочтительным является составной критерий.

При числе результатов наблюдений $n < 15$ принадлежность их к нормальному распределению не проверяют. При этом нахождение доверительных границ случайной погрешности результата измерения по данной методике возможно лишь в случае, если заранее известно, что результаты наблюдений принадлежат нормальному распределению.

Доверительные границы (без учета знака) случайной погрешности результата измерения находят по формуле

$$\Delta_{zp} = t \cdot \bar{\sigma}(A) \quad (8.72)$$

где t - коэффициент Стьюдента, выбираемый из таблиц в зависимости от доверительной вероятности P и числа результатов наблюдений n .

Неисключенная систематическая погрешность результата образуется из составляющих, в качестве которых могут быть неисключенные систематические погрешности метода, средств измерений и т.д. В качестве границ составляющих неисключенной систематической погрешности принимают, например, пределы допускаемых основных и дополнительных погрешностей средств измерений, если случайные составляющие погрешности пренебрежимо малы.

При суммировании составляющих неисключенной систематической погрешности результата измерения неисключенные систематические погрешности средств измерений каждого типа и погрешности поправок рассматривают как случайные величины. При отсутствии данных о виде распределения случайных величин их распределения принимают за равномерные.

Границы неисключенной систематической погрешности Θ результата измерения вычисляют при их равномерном распределении по формуле

$$\Theta(P) = k \sqrt{\sum_{i=1}^m \Theta_i^2} \quad (8.73)$$

где Θ_i - граница i -й неисключенной систематической погрешности; k - коэффициент, определяемый принятой доверительной вероятностью.

Границы погрешности результата измерения вычисляют следующим образом.

1. Если $\frac{\Theta}{\sigma(A)} < 0,8$, неисключенными систематическими погрешностями до сравнению со случайными пренебрегают; и принимают, что граница погрешности результата $\Delta = \Delta_{гр}$.

Если $\frac{\Theta}{\sigma(A)} > 8$, случайной погрешностью по сравнению с систематическими пренебрегают и принимают, что граница погрешности результата $\Delta = \Theta$.

2. Если приведенные выше неравенства не выполняются, границу погрешности результата измерения находят путем построения композиции распределения случайных и неисключенных, систематических погрешностей, рассматриваемых как случайные величины. Если доверительные границы случайных погрешностей найдены, границы погрешности результата измерения Δ (без учета знака) можно вычислить по формуле

$$\Delta = k \cdot \bar{\sigma}_\varepsilon \quad (8.74)$$

где k – коэффициент, зависящий от соотношения случайной и неисключенной систематической погрешности; $\bar{\sigma}_\varepsilon$ – оценка суммарного среднего квадратического отклонения результата измерения.

Оценку суммарного среднего квадратического отклонения результата измерения вычисляют по формуле

$$\bar{\sigma}_\varepsilon = \sqrt{\sum_{i=1}^m \frac{\Theta_i^2}{3} + \bar{\sigma}^2(A)} \quad (8.75)$$

Коэффициент k вычисляют по эмпирической формуле-

$$k = \frac{\Delta_{zp} + \Theta}{\bar{\sigma}(A) + \sqrt{\sum_{i=1}^m \frac{\Theta_i^2}{3}}} \quad (8.76)$$

Форма представления результата измерения должна соответствовать требованиям МИ 1317-86. При симметричной доверительной погрешности результат измерения представляют в форме: $A; \pm\Delta; P$ или $A \pm\Delta; P$, где A - результат измерения. Числовое значение результата измерения должно заканчиваться цифрой того же разряда, что и значение погрешности Δ .

При отсутствии данных о виде функций распределений составляющих погрешности результата измерения и необходимости дальнейшей обработки результатов или анализа погрешностей, результат измерения представляют в форме $A; \bar{\sigma}(A); n; \Theta$.

8.10 Критерии оценивания результатов наблюдений, содержащих грубые погрешности

Критерий Райта

В соответствии с этим критерием результат наблюдения содержит грубую погрешность и должен быть исключен, если его случайное отклонение от среднего арифметического значения превышает величину $3\bar{\sigma}$. Причем первоначальной статистической обработке подлежит весь ряд, включая "подозреваемый" результат. Например, если $(a_i - A) > 3\bar{\sigma}$ то a_i содержит грубую погрешность. Данный критерий можно применять, когда оценка среднего квадратического отклонения $\bar{\sigma}$ определяется на основании достаточно большого числа результатов наблюдений ($n > 20$).

Критерий Романовского

В соответствии с этим критерием результат наблюдения содержит грубую погрешность и должен быть исключен, если его случайное отклонение от среднего арифметического значения превышает некоторое значение $k'\bar{\sigma}$, где k' - безразмерный коэффициент, выбираемый в зависимости от числа наблюдений и уровня значимости p . При этом первоначальной статистической обработке подвергаются только те результаты, которые не вызывают сомнений. Таким образом, если $(a_i - A) > k'\bar{\sigma}$, a_i содержит грубую погрешность. Данный критерий рекомендуется применять, когда оценка среднего квадратического отклонения определяется на основании небольшого числа результатов наблюдений ($n < 20$).

| Число результатов наблюдений | Уровни значимости | | | |
|------------------------------|-------------------|-------|-------|--------|
| | 0,05 | 0,02 | 0,01 | 0,005 |
| 2 | 15,56 | 58,97 | 77,98 | 775,70 |
| 3 | 4,97 | 8,04 | 11,46 | 36,50 |
| 4 | 3,56 | 5,08 | 6,53 | 14,46 |
| 5 | 3,04 | 4,10 | 5,04 | 9,43 |
| 6 | 2,73 | 3,54 | 4,36 | 7,41 |
| 7 | 2,62 | 3,36 | 3,96 | 6,37 |
| 8 | 2,51 | 3,18 | 3,71 | 5,73 |
| 9 | 2,49 | 3,05 | 3,54 | 5,31 |
| 10 | 2,37 | 2,96 | 3,41 | 5,01 |
| 11 | 2,33 | 2,89 | 3,31 | 4,79 |
| 12 | 2,29 | 2,83 | 3,23 | 4,62 |
| 13 | 2,26 | 2,78 | 3,17 | 4,48 |
| 14 | 2,24 | 2,74 | 3,12 | 4,37 |
| 15 | 2,22 | 2,71 | 3,08 | 4,28 |
| 16 | 2,20 | 2,68 | 3,04 | 4,20 |
| 17 | 2,18 | 2,66 | 3,01 | 4,13 |
| 18 | 2,17 | 2,64 | 3,00 | 4,07 |
| 19 | 2,16 | 2,62 | 2,95 | 4,02 |
| 20 | 2,145 | 2,60 | 2,93 | 3,98 |

Критерий Граббса

В соответствии с этим критерием результат наблюдения содержит грубую погрешность и должен быть исключен, если частное k'' от деления его случайного отклонения от среднего арифметического значения на оценку среднего квадратического отклонения результатов наблюдений σ превышает некоторое число k''_{cp} , выбираемое в зависимости от уровня значимости p и числа результатов наблюдений n . Если $\frac{a_i - A}{\sigma} > k''_{cp}$, a_i содержит грубую погрешность. Данный критерий основан на предположении о нормальном распределении результатов наблюдений.

| Число результатов наблюдений | Уровни значимости | | | |
|------------------------------|-------------------|-------|-------|-------|
| | 0,005 | 0,01 | 0,05 | 0,10 |
| 3 | 1,414 | 1,414 | 1,414 | 1,412 |
| 4 | 1,730 | 1,726 | 1,710 | 1,689 |
| 5 | 1,962 | 1,972 | 1,917 | 1,869 |
| 6 | 2,183 | 2,161 | 2,067 | 1,996 |
| 7 | 2,344 | 2,310 | 2,182 | 2,093 |
| 8 | 2,476 | 2,431 | 2,273 | 2,172 |
| 9 | 2,566 | 2,532 | 2,349 | 2,238 |
| 10 | 2,630 | 2,616 | 2,414 | 2,294 |
| 11 | 2,760 | 2,689 | 2,470 | 2,343 |
| 12 | 2,830 | 2,753 | 2,519 | 2,387 |
| 13 | 2,892 | 2,809 | 2,563 | 2,426 |
| 14 | 2,947 | 2,859 | 2,602 | 2,461 |
| 15 | 2,997 | 2,905 | 2,636 | 2,494 |
| 16 | 3,042 | 2,946 | 2,670 | 2,523 |
| 17 | 3,083 | 2,983 | 2,701 | 2,551 |
| 18 | 3,120 | 3,017 | 2,728 | 2,577 |

| | | | | |
|----|-------|-------|-------|-------|
| 19 | 3,155 | 3,049 | 2,754 | 2,601 |
| 20 | 3,187 | 3,079 | 2,779 | 2,629 |
| 21 | 3,217 | 3,106 | 2,801 | 2,644 |
| 22 | 3,245 | 3,132 | 2,829 | 2,664 |
| 23 | 3,271 | 3,156 | 2,853 | 2,683 |
| 24 | 3,295 | 3,179 | 2,862 | 2,701 |
| 25 | 3,318 | 3,200 | 2,890 | 2,718 |

Следует обратить внимание, что критерии Граббса и Романовского находятся в некотором противоречии друг с другом.

Вопросы

1. Какие погрешности называют систематическими? Случайными? Грубыми? Существуют ли погрешности, которые принципиально невозможно устранить?
2. Перечислите основные типы систематических погрешностей и приведите примеры соответствующих погрешностей.
3. Как проверить, отягощены ли результаты эксперимента систематическими и грубыми погрешностями?
4. Какому закону подчиняется распределение случайных погрешностей? Каковы свойства случайных погрешностей?
5. От чего зависит вид кривых нормального распределения случайных величин?
6. Как оценить вероятность того, что результат отдельного измерения окажется внутри заданного интервала значений?
7. Что такое генеральная и выборочная совокупность? В чем заключается различие между генеральными и выборочными параметрами?
8. По каким формулам рассчитывают выборочное среднее и выборочную дисперсию?
9. В чем проявляется статистический характер радиоактивного распада?
10. Приведите статистический вывод основного закона распада. На каких предпосылках основан этот вывод?
11. Какому закону подчиняется распределение числа распадающихся ядер? При каких условиях выполняется это распределение? Каковы его свойства?
12. Как определяются абсолютная и относительная квадратическая флуктуация числа импульсов, регистрируемых детектором за время t , и скорости счета импульсов?
13. С какими источниками рассеяния связаны выборочное среднее квадратическое отклонение и абсолютная квадратическая флуктуация скорости счета импульсов? Можно ли оценить значения этих показателей рассеяния на основании однократного измерения?
14. Почему точечные оценки генеральных параметров нельзя считать вполне определенными?
15. Дайте определение понятий доверительный интервал, доверительные границы, доверительная вероятность, уровень значимости.
16. Как рассчитать доверительный интервал для генерального среднего, если известно значение генеральной дисперсии? Напишите выражение для интервального оценивания истинного значения скорости счета в предположении, что рассеяние результатов измерений обусловлено лишь статистическим характером распада.
17. Каким образом строится интервальная оценка генерального среднего в тех случаях, когда генеральная дисперсия не известна?
18. Для чего необходимо знать, подчиняются ли результаты измерения радиоактивности распределению Пуассона?

19. Как проверить гипотезу о пуассоновском характере распределения результатов измерения активности?
20. Приведите примеры прямых и косвенных измерений.
21. Какими путями можно рассчитать среднее арифметическое и погрешность результата косвенных измерений?
22. Как оценить погрешность определения скорости счета препарата за вычетом фона?
23. Что принимают за критерий оптимальности при выборе продолжительности измерений препарата с фоном и фона?
24. Как найти оптимальную продолжительность измерений?
25. Что является критерием для выбора оптимального режима работы счетчика?
26. Что такое метод наименьших квадратов? Что такое регрессионный анализ?
27. Выведите формулы для расчета методом наименьших квадратов параметров линейной зависимости $y = a + bx$.
28. Как оценить погрешность коэффициентов регрессии в случае линейного уравнения с одной независимой переменной?
29. С какой целью целесообразно использовать закон накопления погрешностей на стадии планирования эксперимента? Приведите соответствующие примеры.
30. Опишите примерную последовательность операций (включая выполнение измерений и обработку данных) при определении радиоактивности серии препаратов, приготовленных в различных опытах и в одном опыте.

Библиографический список.

1. Брегадзе Ю.И., Степанов Э.К., Ярына В.П.. Прикладная метрология ионизирующих излучений. М.: Энергоатомиздат, 1990. 264 с.
2. Лукьянов В.Б., Симонов Е.Ф.. Измерение и идентификация бета-радиоактивных препаратов. М.: Энергоатомиздат, 1982. 136 с.
3. Максимов М.Т., Оджагов Г.О.. Радиоактивные загрязнения и их измерение. М.: Атомиздат, 1989.-304с.
4. Измерение активности радионуклидов. Справочное пособие / Юдин М.Ф., Кармалицин Н.И., Кочин А.Е. и др. С.-Пб. 1997.
5. Караваев Ф.М.. Измерение активности нуклидов. М.: Изд. стандартов, 1972. 227 с.
6. Коренков И.П., Кириллов В.Ф. Методы опеределения рпдиоактивных веществ в воздухе. М. Медицина. 1978. 128 с.
7. Сборник радиохимических и дозиметрических методик. Под. ред. Н.Г. Гусева, У.Я. Маргулиса, А.Н. Марея и др. М. Медгиз. 1959. 460 стр.
8. Дозиметрический и радиометрический контроль при работе с радиоактивными веществами и источниками ионизирующих излучений. (Методическое руководство). Т. 1. Организация и методы контроля. М.: Атомиздат. 1980. 272 с.
9. Дозиметрический и радиометрический контроль при работе с радиоактивными веществами и источниками ионизирующих излучений. (Методическое руководство). Т. 2. Индивидуальный контроль. Радиометрия проб. М.: Энергоиздат, 1981. 208 с.
- 10.Коробков В.И., Лукьянов В.Б.. Методы приготовления препаратов и обработка результатов измерений радиоактивности. М.: Атомиздат, 1966. 440 с.
- 11.Пруткина М.И., Шашкин В.Л. Справочник по радиометрической разведке и радиометрическому анализу. М. Атомиздат. 1975. 248 с.
- 12.Методы радиоизотопного анализа продуктов нейтронной активации и деления. М.: Атомиздат, 1973. 256 с
- 13.Беркуц К. , Виртц К. Нейтронная физика. - М. : Атомиздат, 1968. - 451 с.
- 14.Ярыцынына И.А. , Иванов Ю.В. , Андреев О. Л. Нейтронные измерения. - М. : Издательство стандартов, 1972. - 199 с.
- 15.Караваев Ф. М. Измерение активности нуклидов. - М.: Издательство стандартов, 1972. - 227 с.
- 16.Крамер-Агеев Е.А. , Трошин В.С. , Тихонов Е. Г. Активационные методы спектрометрии нейтронов. - М. : Атомиздат, 1976. - 232 с.
- 17.Жуковская А.С. Методы измерения активности. Учебное пособие. - Свердловск: Изд. УПИ им. С. М. Кирова, 1986. - 73 с.
- 18.Метрология нейтронных измерений на ядерно-физических установках. Т.1. /Под ред. Васильева Р.Д. - М. :ЦНИИАтоминформ, 1976.- 253 с.
- 19.Метрология нейтронных измерений на ядерно-физических установках. Т.2. /Под ред. Васильева Р.Д. - М. :ЦНИИАтоминформ, 1976.- 176 с.

20. Ломакин С.С., Петров В.И., Самойлов П.С. Радиометрия нейтронов активационным методом. М. : Энергоатомиздат, 1983. - 144 с.
21. Климентов В.Б., Копчинский Г.А., Фрунзе В.В. Активационные измерения потоков и спектров нейтронов в ядерных реакторах. М. : Издательство стандартов, 1974 - 208 с.