

4. ОПРЕДЕЛЕНИЕ АБСОЛЮТНОЙ И ОТНОСИТЕЛЬНОЙ РАДИОАКТИВНОСТИ

Радиоактивность препаратов можно оценить двумя способами: определением абсолютной радиоактивности и определением относительной радиоактивности. Выбор способа диктуется поставленной задачей.

4.1 Абсолютная радиоактивность

Величину абсолютной активности препарата можно оценить методом прямого счета распадов; с помощью ионизационной камеры по ионизационному току; калориметрическим и другими методами. Конкретный выбор метода и условий измерения зависит от природы и энергии частиц, агрегатного состояния исследуемого вещества и т. д. Для точного определения абсолютной активности необходимо знать схему распада данного изотопа. Наиболее распространено определение абсолютной активности методом прямого счета, причем может измеряться либо полное число частиц, испускаемых препаратом, либо строго определенная их часть.

Для абсолютных измерений активности α - и β -излучателей широко применяют метод 4π -счета, при котором регистрируются частицы, испускаемые из источника в любом направлении.

Для измерения α - и β -радиоактивности твердых веществ обычно используют два одинаковых счетчика - либо 4π -пропорциональные, либо гейгеровские, симметрично расположенные относительно препарата, нанесенного на тончайшую пленку, для которой поправкой на поглощение α - и β -частиц можно практически пренебречь.

При измерении β -излучателей сцинтилляционными счетчиками для достижения 4π -геометрии твердые препараты либо закрывают с обеих сторон тончайшими нерастворимыми пленками и опускают в жидкий сцинтиллятор, либо прямо растворяют в жидком сцинтилляторе. Наконец, излучатель может быть заполимеризован в пластмассовом сцинтилляторе или введен в кристалл при выращивании неорганического сцинтиллятора.

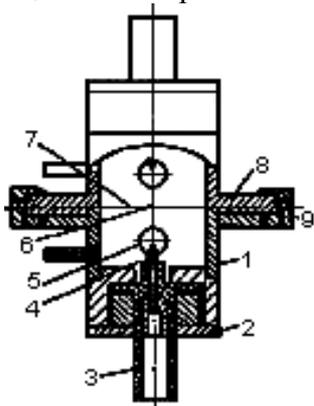


Рис. 11. Разрез проточного 4π -счетчика, работающий на метане: 1 - корпус счетчика; 2 - крышка корпуса; 3 - тефлоновый изолятор; 4 - стержень для крепления петли; 5 - петля; 6 - измеряемый радиоактивный образец; 7 - держатель для препарата; 8 - фланец; 9 - накидная муфта с резьбой. Метан берут из сети, осушают перед детектором хлористым кальцием и после детектора сжигают на обычной газовой горелке.

Абсолютные активности α - и β -излучателей можно измерять на торцовых счетчиках с малой толщиной окошка. При этом должны точно учитываться геометрические условия измерений (счет при фиксированном телесном угле), поправки на поглощение и самопоглощение α - и β -излучений и на обратное рассеяние β -излучения.

Ошибки в определении абсолютной активности β -излучателей с помощью 4π -счетчика могут быть связаны с отклонением реального геометрического коэффициента от 4π -геометрии, а также с поглощением β -частиц в материале образца и его подложке. Даже без учета этих факторов точность определения абсолютной активности мягких β -излучателей составляет 10%, а жестких - около 5%. что существенно лучше точности, которую можно получить с использованием метода фиксированного телесного угла. С учетом этих факторов методы 4π -счета позволяют измерять абсолютную активность с точностью 2-3%.

Метод, состоящий в одновременном использовании сцинтиллятора в качестве источника и детектора частиц, имеет много интересных применений. Если радиоактивный источник находится в самом сцинтилляторе, то при этом достигается так называемая 4π -геометрия, т. е. 100% регистрация; при этом эффективная толщина источника равна нулю и отсутствует поверхностное рассеяние. При помощи этого метода могут быть измерены очень слабые активности. Существует методика выращивания из расплава кристаллов йодистого натрия, активированного таллием, выращиваются и добавками следовых количества радиоактивного вещества, подлежащего изучению. Таким методом был изучен ^{204}Tl . Этот изотоп распадается двумя путями: 98% ядер ^{204}Tl испускают β -частицы ($E_{\text{макс}} = 760$ кэВ), в результате образуется ^{204}Pb ; остальные ядра претерпевают К-захват ($E=400$ кэВ), что приводит к образованию ^{204}Hg . Схемы распада ^{204}Tl были определены по амплитудному распределению импульсов от β -частиц и по относительной величине максимума характеристического К-излучения Hg, который идентифицировался путем сравнения с максимумом, производимым характеристическим К-излучением соседних элементов.

При помощи сцинтиллятора с введенным внутрь его источником проще определить некоторые схемы распада, так как такой сцинтиллятор способен интегрировать одновременно возникающие импульсы в один

импульс, по величине равный сумме составляющих импульсов. Рассмотрим, например, обычный β -распад с энергией $E_{\text{макс}}$, сопровождающийся испусканием γ -кванта с энергией E_γ , который может претерпеть внутреннюю конверсию на K -, L -, ... -оболочках. Характеристическое излучение, сопровождающее внутреннюю конверсию, в общем случае будет всегда полностью поглощаться в кристалле, создавая фотоэлектроны. Благодаря эффекту интегрирования в детекторе наблюдаются два основных типа импульсов, возникающих от β -частиц (обладающих энергией от 0 до $E_{\text{макс}}$), когда испускаемые γ -кванты не регистрируются кристаллом и от β -частиц и фотоэлектронов (полная энергия от E_γ до $E_{\text{макс}}+E_\gamma$). Последние импульсы могут возникать различными путями:

- 1) β -частица+конверсионный электрон с K -оболочки + фотоэлектроны от поглощения характеристического K -излучения;
- 2) β -частица+конверсионный электрон с L -оболочки + фотоэлектроны от поглощения характеристического L -излучения;
- 3) β -частица+фотоэлектроны от поглощения γ -кванта при фотоэффекте.

Таким образом получаются два амплитудных спектра импульсов, соответствующих энергиям от 0 до $E_{\text{макс}}$ и от E_γ до $E_\gamma+E_{\text{макс}}$.

Этот метод был применен для изучения ^{203}Hg . При этом 4π -геометрия была осуществлена путем введения тонкого выпаренного источника между двумя кристаллами NaI(Tl) . Показано, что разрешение двух спектров снижено вследствие наличия комптон-электронов.

Путем введения радиоактивных изотопов в органические жидкие фосфоры можно также получить систему источник - фосфор с 4π -геометрией. Аналогичный метод, при помощи которого также достигается 4π -геометрия, но не достигается нулевой толщины источника, состоит в погружении в жидкий фосфор тонкой фольги с осажденным на ней источником. Такой способ применялся для измерения очень слабых β -активностей, меньших 10^{-9} кюри. Этот метод удобен при работах, где используются радиоактивные индикаторы атомы.

Для измерений твёрдых радиоактивных источников используют газоразрядные 4π -счётчики. Геометрия измерений, близкая к 4π , осуществляется также при применении жидкостных сцинтилляционных счётчиков, и камер внутреннего наполнения.

Для измерения абсолютных активностей α - и β -излучений газов и паров используются пропорциональные счетчики внутреннего наполнения (проточные и тупиковые). Они позволяют регистрировать β -частицы самых низких энергий ($<0,15$ МэВ). При измерении относительно высоких активностей счетчиком Гейгера-Мюллера необходимо вводить поправку на мертвое время счетчика. В этом отношении пропорциональный счетчик, обеспечивающий скорости счета до 10^5 имп/сек, обладает значительным преимуществом по сравнению со счетчиком Гейгера - Мюллера. Попавшие в чувствительный объем газовых счетчиков α - и β -частицы регистрируются с эффективностью, близкой к 100%, γ -излучение регистрируется с эффективностью 1 % или ниже. Значительно более эффективны к γ -излучению сцинтилляционные счетчики с кристаллами NaI(Tl) или CsI(Tl) , которые обладают достаточно малым разрешающим временем.

Когда простой β -распад сопровождается испусканием γ -квантов (например, распад изотопа ^{60}Co) или в каскаде последовательно испускаются две группы γ -лучей, для измерения абсолютной активности можно использовать методы β - γ - и γ - γ -совпадений соответственно. В этих случаях применяют и гейгеровские, и сцинтилляционные счетчики. При этом отпадает необходимость предварительной калибровки счетчиков по чувствительности. Установки, включающие два детектора, настраивают так, чтобы отдельно регистрировались излучения разного рода или разной энергии. В общем случае следует учитывать долю β -частиц, поглощённых в воздухе и окошке счётчика, а также самопоглощение в толще препарата и отражение излучения от подложки.

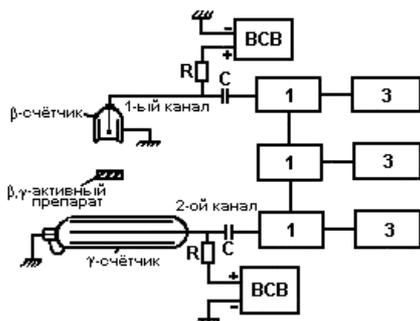


Рис. 12. Блок-схема установки для измерения абсолютной активности методом β -, γ -совпадений со счетчиками Гейгера-Мюллера: 1 - усилители; 2 - схема совпадений; 3 - регистрирующие устройства.

В ходе эксперимента измеряют активность источника с нуклидом, распад которого сопровождается каскадным испусканием именно этих излучений. Активность определяют по формуле:

$$A = \frac{I_1 I_2}{I_{12}} F\left(\frac{I_1}{I_2}\right),$$

где I_1 и I_2 - скорости счёта, получаемые с каждым из детекторов, I_{12} — скорость счёта совпадений, а F - некоторая функция от (I_1/I_2) , стремящаяся к 1 при $(I_2/I_1) \rightarrow 1$. В наиболее простых случаях $F(I_2/I_1) = 1$.

Пусть мы имеем препарат радиоактивного изотопа, в котором происходит A распадов в единицу времени, причём на каждую β -частицу испускается один или несколько γ -квантов. Будем измерять радиоактивность этого препарата двумя счетчиками Гейгера-Мюллера, включенными в схему совпадений (Рис. 12). Допустим, что один из счетчиков регистрирует только β -частицы, а другой только γ -кванты. Препарат помещен между счетчиками. Тогда β -счетчик будет регистрировать β -частицы со скоростью счета I_β , равной:

$$I_\beta = \varphi_\beta A \quad (9)$$

а γ -счётчик - γ -кванты со скоростью счёта I_γ , равной

$$I_\gamma = \varphi_\gamma A \quad (10)$$

φ_β и φ_γ - коэффициенты счёта β - и γ -счётчиков соответственно.

Так как φ_β и φ_γ фактически являются вероятностями регистрации β -частиц и γ -квантов соответственно, то вероятность сложного события одновременной регистрации β -частицы и γ -кванта, образующихся при одном акте распада, обоими счетчиками, т. е. число совпадений в единицу времени $I_{\beta\gamma}$ будет выражаться зависимостью:

$$I_{\beta\gamma} = \varphi_\beta \cdot \varphi_\gamma \cdot A \quad (11)$$

Путем несложных арифметических преобразований находим:

$$\frac{I_\beta \cdot I_\gamma}{I_{\beta\gamma}} = \frac{\varphi_\beta A \cdot \varphi_\gamma A}{\varphi_\beta \varphi_\gamma A}; \quad A = \frac{I_\beta \cdot I_\gamma}{I_{\beta\gamma}} \quad (12)$$

Таким образом, экспериментально измерив величины I_β , I_γ и $I_{\beta\gamma}$, определяют по формуле (12) скорость распада данного препарата. В реальной установке скорость счета в 1-ом канале I_1 является суммой:

$$I_1 = I_\beta + I_{\gamma 1} + I_{\beta\phi} \quad (13)$$

где I_β - число β -квантов, регистрируемых β -счетчиком в единицу времени; $I_{\gamma 1}$ - активность фона.

Скорость счета во 2-ом канале I_2 выражается зависимостью:

$$I_2 = I_{\gamma 2} + I_{\gamma\phi} \quad (14)$$

где $I_{\gamma\phi}$ - активность фона γ -счётчика определяемая в отсутствие препарата. Скорость счета в канале совпадений I_3 является суммой:

$$I_3 = I_{\beta\gamma} + I_{\gamma\gamma} + I_{cl} + I_k \quad (15)$$

где $I_{\gamma\gamma}$ - число γ - γ -совпадений, когда на один распад приходится два или более γ -кванта; I_{cl} - число случайных совпадений; I_k - совпадения, происходящие за счет космических лучей.

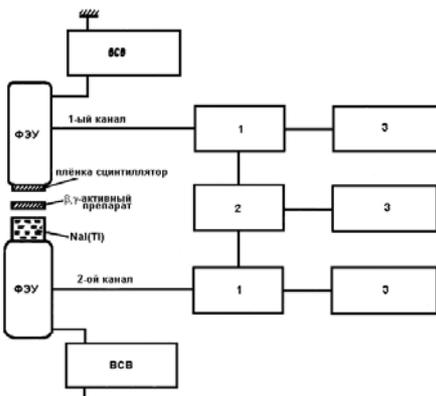
Сумму ($I_{\gamma\gamma} + I_k$) измеряют, закрыв препарат алюминиевой фольгой такой толщины, при которой полностью поглощается β -излучение. Число случайных совпадений определяют по формуле:

$$I_{cl} = 2\tau I_1 I_2 \quad (16)$$

где τ - разрешающее время схемы совпадений, которое определяется экспериментально.

Для этих же целей может быть использована установка с двумя сцинтилляционными счётчиками (Рис. 13).

Рис. 13. Блок-схема установки для измерения абсолютной активности методом β -, γ -совпадений со сцинтилляционными счетчиками.



Абсолютная активность β -излучателя может быть определена по потере заряда препаратом. При этом вторичные электроны, выбитые при прохождении β -частиц через материал самого излучателя, обладающие энергиями в несколько десятков электрон-вольт, задерживаются сеткой, на которую подается небольшой отрицательный потенциал (до 300 В). Прибор для измерения потери заряда откачивают, чтобы исключить ионизацию воздуха частицами. Абсолютная активность непосредственно определяется по потере заряда препаратом за единицу времени.

Абсолютная активность может измеряться токовыми ионизационными камерами. Для расчета абсолютной активности α -излучателя по величине ионизационного тока необходимо знать энергию α -частиц. Затрата энергии на образование одной пары ионов в воздухе принимается равной 35,5 эВ. При измерении абсолютной активности β -излучателей метод ионизационной камеры применяется для определения средней энергии β -частиц. Ионизационный ток, обусловленный вторичными эффектами, сопровождающими прохождение γ -излучения через объем ионизационной камеры, пропорционален числу и энергии γ -квантов. Поэтому для оценки абсолютной активности γ -излучателей необходима предварительная калибровка камеры.

4.2 Параметры, влияющие на скорость счёта

Определение абсолютной активности методом фиксированного телесного угла заключается в измерении числа частиц или квантов, регистрируемых детектором излучения при точно установленном значении геометрического коэффициента и целого ряда других поправок (на эффективность, поглощение, самоослабление, обратное рассеяние), изменяющихся с изменением геометрических условий. В качестве детектора используются обычно счетчики Гейгера - Мюллера, чаще всего торцовые, иногда - цилиндрические. Измерения абсолютной активности препаратов по β -излучению в большинстве случаев дают более точные результаты, чем измерения по γ -лучам. При переходе от регистрируемой прибором относительной активности (скорости счёта), выражаемой в имп/мин, к абсолютной активности, выраженной числом актов радиоактивного распада в единицу времени (распад/мин, распад/сек) или в единицах кюри, необходимо учитывать многочисленные факторы, некоторые из которых, рассмотрены ниже.

4.2.1 Разрешающее время

Чем больше интенсивность источника ионизирующих частиц, тем больше их количество будет попадать в интервал мёртвого времени счётчика, не образуя отдельных электрических сигналов, и тем больше будет ошибка счёта. Разрешающее время счётчика τ_p можно определить по эталонным препаратам с известной абсолютной активностью, например из стандартных наборов ОСГИ. С этой целью строится график зависимости скорости счёта I имп/сек от активности препарата a (Рис. 13). При отсутствии просчётов между величинами интенсивности счёта и активностью препарата сохраняется пропорциональность, т.е. график представляет собой прямую линию. Отклонение от прямой свидетельствует о наличии просчётов.

Разрешающее время счетной установки, τ , - минимальный промежуток времени между двумя последовательными импульсами, которые регистрируются отдельно. Имеет размерность сек/имп или мин/имп, однако для краткости его выражают обычно в долях секунды или минуты. Обусловленные разрешающим временем потери при регистрации импульсов складываются из потерь за счёт разрешающего времени отдельных блоков счётной установки. Разрешающее время счётчиков Гейгера-Мюллера (мёртвое время) составляет примерно $2 \cdot 10^{-4}$ сек, сцинтилляционных счётчиков - 10^{-6} сек, усилительных блоков - от $5 \cdot 10^{-5}$ до 10^{-6} сек для разных типов приборов. Общее разрешающее время установки определяется, в конечном счёте, разрешающим временем того из блоков, для которого τ максимально.

Разрешающее время установки:

$$\tau = \frac{I - I_c}{I \cdot I_{c p}} \quad (17)$$

где I - зарегистрированная скорость счёта, I_c - скорость счёта за вычетом фона.

Обычно разрешающее время детектора является доминирующим при определении разрешающего времени серийного прибора в целом. Зная τ_p можно вычислить истинную скорость счёта по формуле:

$$I_{ист \text{ имп/сек}} = \frac{I_{изм}}{I - I_{изм} \tau_p} \quad (18)$$

Поправка на разрешающее время:

$$f(\tau_p) = \frac{1}{1 - I_c \tau} \geq 1 \quad (19)$$

Для вычисления относительной ошибки скорости счёта, вызванной просчётом частиц, можно воспользоваться формулой:

$$\frac{I - I_c}{I} = I_c \tau \quad (20)$$

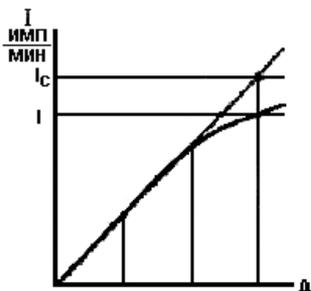


Рис. 13. Зависимость скорости счёта I имп/сек от активности препарата a .

Поскольку произведение $I_c \tau$ - равно доле незарегистрированных установкой импульсов, его величина позволяет судить о том, следует ли вводить поправку на разрешающее время прибора. Обычно поправку учитывают в тех случаях, когда доля незарегистрированных импульсов превышает 1%. Поправка на разрешающее время вносится в результаты измерений прежде всех остальных поправок. Для препаратов со скоростью счёта до 4000 имп/мин, регистрируемых с помощью счетчиков Гейгера-Мюллера и до 10000 имп/мин при использовании сцинтилляционного счётчика, поправку на разрешающее время установки вводить не обязательно. На практике избегают пользоваться большими активностями, если в этом нет особой необходимости.

4.2.2 Фон

Фон счетчика – показания прибора в отсутствие исследуемых источников излучения. Фон счётчиков обусловлен космическими лучами, самопроизвольными импульсами за счёт испускания термоэлектронов катодом счётных трубок или фотоумножителей (ложные импульсы), а также радиоактивными загрязнениями рабочих помещений. Величина фона может служить для проверки правильности работы счётчика. В паспорте, прилагаемому к счётчику, указывается максимальная величина натурального фона. Возросший фон свидетельствует о том, что счётчик выходит из строя, либо о наличии радиоактивных загрязнений внутренних поверхностей домика.

Определение фона проводится в тех же условиях, что и измерение активности препарата. Поэтому, измеряя фон, следует помещать в домик пустой держатель для образцов. Фон счётчика (включая фон от γ -излучения препарата, если измерения ведутся по β -лучам) вычитают после введения поправки на разрешающее время. Скорость счета, исправленную на разрешающее время и фон, называют истинной скоростью счета – она связана с величиной абсолютной активности образца. Если регистрируемая активность не менее чем в 20 раз превышает скорость счёта фона, то можно ограничиться двукратным измерением фона в течение дня – в начале и в конце работы. При более низких уровнях регистрируемой активности, нужно чередовать измерения препарата и фона. Для учета γ -фона снимают кривую поглощения β -частиц; остаточную активность, не изменяющуюся с дальнейшим увеличением толщины поглотителя, приписывают γ -компоненте. В случае мягкого γ -излучения этот способ приводит к ошибкам вследствие поглощения γ -лучей и изменения эффективности счетчика к γ -лучам при введении поглотителя.

4.2.3 Эффективность счётчика

Эффективность счетчика к данному виду излучения - вероятность того, что частица или квант, проникшие в рабочий объем детектора излучения, будут зарегистрированы. Коэффициент эффективности ε определяется как отношение числа зарегистрированных частиц или квантов I к числу частиц или квантов I_x , попавших в рабочий объем счетчика:

$$\varepsilon = \frac{I}{I_x} \quad (21)$$

Эффективность гейгеровских счетчиков к β -лучам близка к единице ($\varepsilon = 0,995$), но может быть и больше единицы за счет возникновения ложных импульсов. Эффективность можно улучшить, направляя пучок β -частиц в рабочий объем счетчика через диафрагму.

Эффективность счётчика Гейгера-Мюллера к γ -лучам зависит от энергии квантов, от материала и толщины катода счётчика. Для γ -квантов с энергией в 1 МэВ при оптимальной толщине катода из латуни или алюминия эффективность гейгеровского счётчика составляет всего 0,5%, а для γ -квантов с энергией в 0,5 МэВ не превышает 0,2%. Эффективность сцинтилляционных счётчиков к γ -лучам в десятки раз выше, чем эффективность счётчиков Гейгера к квантам такой же энергии.

4.2.4 Геометрический коэффициент

Геометрический коэффициент, η , - поправка, учитывающая потери излучения, обусловленные взаимным расположением препарата и счётчика. Геометрический коэффициент η равен отношению телесного угла ω , под которым детектор облучается источником излучения, к полному телесному углу 4π :

$$\eta = \frac{\omega}{4\pi} \quad (22)$$

Геометрический коэффициент показывает, какая доля от общего числа A частиц или квантов, испускаемых препаратом, попадает на поверхность детектора излучения. При условии изотропности излучения геометрический коэффициент равен:

$$\eta = \frac{I_\eta}{A} \quad (23)$$

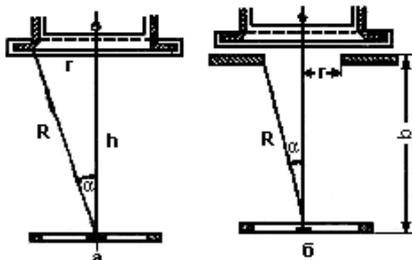


Рис. 14. Расположение препарата относительно торцового счетчика без диафрагмы (а) и с диафрагмой (б).

Для примера, приведём расчет геометрического коэффициента для торцового счетчика Гейгера-Мюллера.

Если точечный препарат расположен на продолжении оси торцового счетчика, имеющего окно радиуса r см, и расстояние от препарата до чувствительного объема счетчика составляет h см (**Рис. 14а**), то геометрический коэффициент легко рассчитать по формуле:

$$\eta = \frac{1}{2} \left(1 - \frac{h}{\sqrt{h^2 + r^2}} \right) \quad (24)$$

Чтобы точнее фиксировать величину телесного угла, возле окна торцового счетчика часто помещают диафрагму, диаметр которой в 1,5-2 раза меньше диаметра окна счетчика (**Рис. 14б**). В этом случае геометрический коэффициент по-прежнему выражается формулой (24), но r соответствует радиусу отверстия диафрагмы, а h - расстоянию от препарата до верхней плоскости диафрагмы.

Для препаратов, радиус которых не превышает $0,5r$, можно пользоваться значениями η , соответствующими точечному препарату.

Если радиоактивный препарат нельзя рассматривать как точечный, то формулы для расчета геометрического коэффициента становятся более сложными. Для препаратов, радиус которых s меньше радиуса окна счетной трубки ($s/r \leq 1$), применима формула:

$$\eta_s = \frac{1}{2} \frac{1}{s^2} \left[1 - \frac{h}{R_r} - \frac{3}{8} \frac{hr^2}{R_r^3} \cdot \frac{s^2}{R_r^2} - \frac{5}{64} \frac{hr^2}{R_r^3} \cdot \frac{s^4}{R_r^4} \left(3 - 7 \frac{h^2}{R_r^2} \right) - \dots \right] \quad (25)$$

где $R_r = \sqrt{h^2 + r^2}$.

Когда радиус препарата больше радиуса входного окна детектора излучений ($s/r \geq 1$), выражение для расчета геометрического коэффициента принимает вид

$$\eta_s = \frac{1}{2} \frac{1}{s^2} r^2 \left[1 - \frac{h}{R_s} - \frac{3}{8} \frac{hs^2}{R_s^3} \cdot \frac{r^2}{R_s^2} - \frac{5}{64} \frac{hs^2}{R_s^3} \cdot \frac{r^4}{R_s^4} \left(3 - 7 \frac{h^2}{R_s^2} \right) - \dots \right] \quad (26)$$

При $s/r = 1$ выражения (17) и (18) совпадают. Для точечного источника ($s = 0$) соотношение (25) совпадает с (24).

Формулы (24) - (26) определяют долю излучения, попадающего на счетчик от точечного или круглого источника, если излучение не рассеивается промежуточной средой (воздухом), а также если нет отражения излучения от стенок измерительного устройства (домика или кассеты). Влияние этих факторов может существенно изменить долю падающих на счетчик частиц.

Геометрический коэффициент η можно найти экспериментально путём измерения зависимости скорости счёта препарата (точечного источника излучения) от расстояния до торцового счётчика. Строят график зависимости $I/\eta = f(h/r)$ и по прямолинейному участку находят η_0 . Кроме того, если имеется препарат с известной активностью A , то значение геометрического коэффициента может быть найдено по формуле (23).

Для цилиндрического счётчика радиуса r и точечного препарата, помещённого на расстоянии h от нити счётчика на перпендикуляре, проведённом из её середины, величину геометрического коэффициента можно получить по формуле:

$$\eta = \frac{1}{\pi} \arcsin \frac{r}{h}, \quad (27)$$

если \arcsin в радианах.

В более сложных случаях подобные расчёты оказываются либо слишком громоздкими либо вообще невозможными, так что величину геометрического коэффициента приходится определять опытным путём. Для этого измеряют скорость счёта эталона, абсолютная активность которого известна, а форма и размеры соответствуют форме и размерам измеряемых препаратов. Для определения геометрического коэффициента из опытных данных пользуются формулой (23).

4.2.5 Поглощение излучения

Поправка на поглощение излучения в стенке детектора излучений и в слое воздуха между препаратом и счетчиком (коэффициент K , учитывающий поглощение) вследствие неэкспоненциального характера поглощения при малых толщинах поглощающего слоя определяется с точностью 10-15%. При расчете полной толщины поглощающего слоя x толщину стенки детектора излучения и слоя воздуха между препаратом и счетчиком выражают в $\text{мг}/\text{см}^2$, учитывая, что слой воздуха толщиной 1 см при 760 мм рт. ст. и 25°C эквивалентен $1,18 \text{ мг}/\text{см}^2$. Толщину стенок счетной трубки определяют, взяв старую счетную трубку той же марки (для счетчиков СТС-6 толщина стенок составляет $57-63 \text{ мг}/\text{см}^2$).

В случае β -излучения коэффициент поглощения K как функцию толщины стенки счётчика, выраженной в долях максимального пробега $R_{\text{макс}}$ можно определить по эмпирическому графику

зависимости коэффициента поглощения K (в %) от относительной толщины стенки трубки. Если толщина стенки счётной трубки составляет d_1 г/см², а толщина слоя воздуха между препаратом и счётчиком равна d^2 г/см², то для $d=d_1+d_2 \leq 0,3R_{max}$ коэффициент поглощения можно рассчитать по формуле:

$$K = e^{-\mu x} \quad (28)$$

При $x/R_{max} > 0,3$ для определения коэффициента поглощения следует пользоваться эмпирическим графиком. В большинстве случаев коэффициент поглощения γ -излучения в стенках счётных трубок практически равен единице.

4.2.6 Самоослабление излучения

Поправка на самоослабление β -излучения в материале препарата (коэффициент самоослабления S) показывает, какая доля испускаемых частиц достигает поверхности препарата.

Коэффициент S зависит от толщины препарата, атомного номера материала препарата и от энергии испускаемых препаратом частиц или квантов. Величину поправки на самоослабление определяют экспериментально или рассчитывают по формуле:

$$S = \frac{1 - e^{-\mu d_{np}}}{\mu d_{np}} \quad (29)$$

где μ - массовый коэффициент ослабления β -излучения в материале препарата (часто пользуются значением μ для алюминия); d_{np} - толщина препарата, мг/см².

Поправка на самоослабление имеет наибольшее значение при измерении мягкого β -излучения. При регистрации γ -квантов поправка на самоослабление обычно не учитывается ($S=1$).

В случае мягких β -излучателей для серии образцов с одинаковой удельной активностью поправки на самоослабление можно не вводить, если использовать тонкие или, наоборот, достаточно толстые образцы. В последнем случае минимальная толщина, необходимая для таких измерений, не превышает величины максимального пробега R_{max} , а для большинства практических целей достаточна толщина $0,75R_{max}$.

4.2.7 Отражение излучения

Поправка на отражение излучения от подложки, на которую нанесен препарат, q , может принимать значения большие или равные единице: $q \geq 1$.

В результате процессов рассеяния некоторая часть излучения, испускаемого в направлении подложки, может отклоняться на 90° от своего первоначального пути, т.е. по существу отражаться атомами подложки. Отношение скорости счёта I_q препарата, нанесённого на подложку определённой толщины, к скорости счёта I_0 того же препарата при бесконечно малой толщине подложки

$$q = \frac{I_q}{I_0} \quad (30)$$

называется коэффициентом обратного рассеяния. Он увеличивается с толщиной подложки и достигает насыщения при толщинах, равных в случае β -излучения $0,2-0,4R_{max}$. При толщинах подложек, равных слою насыщения, обратное рассеяние возрастает с увеличением атомного номера вещества подложки, также обнаруживая тенденцию к насыщению при больших Z . Обратное рассеянное β -излучение тем мягче, чем меньше атомный номер вещества подложки. Этот эффект объясняется тем, что от подложек из лёгких веществ β -частицы более интенсивно рассеиваются под большими углами к нормали, а от подложек из тяжёлого материала более интенсивное рассеяние происходит в направлении нормали. При сравнении результатов измерений, проводившихся в различных условиях, следует учитывать разницу в энергии обратно рассеянного излучения. Эффект обратного рассеяния уменьшается при росте толщины препарата. Для достаточно толстых препаратов ($D > 0,2R_{max}$) коэффициент q становится равным единице и может не учитываться. При измерении γ -излучения поправку на обратное рассеяние обычно не вводят.

Коэффициент отражения q определяют экспериментально - сравнением скорости счёта препарата, нанесённого на тонкую органическую пленку, со скоростью счёта препарата, нанесённого на подложку из определенного материала данной толщины.

4.2.8 Учёт схемы распада

Если регистрируемое излучение обладает сложным составом, т.е. состоит из нескольких компонент, из которых могут регистрироваться не обязательно все, то необходимо учитывать вероятности p_i такого способа распада, при котором испускаются частицы или кванты 1-й, 2-й, ..., i -й парциальных энергий. Эта вероятность, численно равная доле излучения данного вида (или данной энергии) по отношению к общему числу актов распада, называется поправкой на схему распада, в большинстве случаев $p \leq 1$. При наличии

большого числа электронов внутренней конверсии величина поправки p_i может быть больше единицы. Необходимые сведения о схеме распада изотопа берут из таблиц изотопов.

4.3 Связь между регистрируемой и абсолютной активностью

Истинная скорость счета связана с величиной абсолютной активности A посредством коэффициента счета (иногда его называют полной эффективностью счета) уравнением,

$$\varphi = \frac{I}{A} \quad (31)$$

в котором

$$\varphi = \varepsilon \eta p K S q \quad (32)$$

Таким образом, абсолютная активность (в распад/мин) равна:

$$A = \frac{I}{\varepsilon \eta p K S q} \quad (33)$$

или в единицах мккюри, учитывая, что $1 \text{ мккюри} = 3,7 \cdot 10^4 \cdot 60 = 2,22 \cdot 10^6$.

$$A = \frac{I}{2,22 \cdot 10^6 \varepsilon \eta p K S q} \quad (34)$$

В случае сложного распада или смеси изотопов произведение коэффициентов ε , p , K , S , q вычисляется для каждого β - или γ -компонента- в отдельности и результаты суммируются; тогда:

$$A = \frac{I}{2,22 \cdot 10^6 \eta (\varepsilon_1 p_1 K_1 S_1 q_1 + \varepsilon_2 p_2 K_2 S_2 q_2 + \dots)} \quad (35)$$

Точность определения абсолютной активности методом фиксированного телесного угла даже в самых благоприятных случаях составляет лишь 20-25% независимо от энергии излучения из-за погрешностей, связанных с учетом ослабления, самоослабления и обратного рассеяния.

Обычно стремятся создать такие условия измерений, чтобы значения поправок были по возможности малы. Для этого применяют «бесконечно тонкие» препараты, нанесённые на тонкую органическую плёнку, располагая их на расстоянии 40-50 мм от дна домика. Для регистрации β -активности используют торцовые счётчики; диафрагмирование окна счётчика позволяет повысить точность расчёта геометрического коэффициента и улучшить эффективность счётчика к β -лучам.

При регистрации β -излучения с помощью счетчиков Гейгера- Мюллера принимают эффективность счётчика к β -лучам $\varepsilon = 1$. Для препаратов жестких β -излучателей, полученных накалыванием радиоактивного раствора на фильтровальную бумагу, поправку на самоослабление обычно не учитывают, полагая $S = 1$. Если подложка, на которую нанесен такой препарат, сделана из материалов с невысоким эффективным атомным номером (плексиглас, бумага), поправку на обратное отражение q также принимают равной единице.

Если источники обладают значительной активностью, применяют калориметрический метод, основанный на измерении теплового эффекта, вызванного распадом нуклида в образце. Зная среднюю энергию, поглощаемую в системе образец - калориметр при одном акте распада, и общую интенсивность выделения энергии источником, рассчитывают активность нуклидов.

Если удаётся выделить нуклид в макроколичествах, его активность может быть найдена по формуле:

$$A = \lambda M, \quad (36)$$

где M — число атомов нуклида в образце, λ - постоянная распада (в сек^{-1}). Этот метод называется весовым, т.к. M рассчитывают, исходя из веса нуклидов в источнике. Весовой метод называется масс-спектрометрическим или методом эмиссионного спектрального анализа, если относительное содержание нуклида в источнике определяют с помощью масс-спектрометра или эмиссионного спектрального анализа.

При измерениях абсолютной активности к препаратам предъявляют следующие требования: радиоактивное вещество должно быть равномерно нанесено на поверхность подложки весьма тонким слоем. Подложкой препарата должна быть тонкая пленка из вещества с малым атомным номером. Обычно применяют пленки из органических веществ. Для такой подложки можно пренебречь эффектом обратного рассеяния и поглощения излучения.

4.4 Относительные измерения радиоактивности

Массовые измерения активности осуществляют в основном относительными методами, сравнивая измеряемые источники с образцовыми (откалиброванными с высокой точностью радиоактивными растворами, жидкостями, газами, при создании которых используют методы абсолютных измерений активности). Относительные измерения активности нуклидов, распад которых сопровождается γ -излучением, обычно осуществляют с помощью ионизационных камер, сцинтилляционных счётчиков и полупроводниковых детекторов. В случае β -излучающих нуклидов используют ионизационные камеры и

газоразрядные счётчики. Массовые измерения активности низкоэнергетичных β -излучателей (^{14}C , ^3H и др.) осуществляют методом жидкостного сцинтилляционного счёта.

Относительные измерения заключаются в сравнении скорости счета исследуемого препарата со скоростью счета стандартного препарата (эталоны), содержащего известное количество того же изотопа, или в сравнении между собой регистрируемой активности двух препаратов, содержащих одинаковые изотопы. Достоинство относительных измерений в их простоте. Если эталоном является препарат с известной абсолютной активностью, то от результата относительных измерений легко перейти к абсолютной активности исследуемого образца.

Для правильного проведения измерений относительной активности исследуемых препаратов необходимо, чтобы форма и размеры препаратов (их площадь, толщина) были одинаковы. Препараты должны одинаково располагаться относительно счетчика. Радиоактивное вещество должно быть равномерно распределено по всему объему препаратов. Перед измерением препараты следует тщательно высушивать. Подложки, на которые нанесены измеряемые препараты, должны быть выполнены из одинакового материала и иметь равную толщину. Все измерения должны проводиться на одной установке с одним и тем же счетчиком и держателем для препаратов. Следует стремиться к тому, чтобы измерения всех образцов были выполнены с одинаковой статистической точностью.

Ошибки, 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 счетной трубки. Для точечного препарата и торцового счетчика с диаметром входного окна 20 мм расстояние между препаратом и окном счетчика должно составлять 2—3 см. Для цилиндрических счетчиков влияние указанного геометрического фактора уменьшается, если измеряемые образцы огибают счетчик. Для устранения ошибок, обусловленных различиями в толщине измеряемых препаратов α - и β -излучателей, пользуются либо бесконечно тонкими препаратами, либо препаратами, толщина которых превосходит толщину слоя насыщения. В качестве подложек используют тонкую органическую пленку, фильтровальную бумагу или слои вещества толщиной, соответствующей толщине слоя насыщения.

Если в процессе работы приходится производить замену счетчиков, то следует результаты измерений, выполненных в прежних условиях, пересчитать по отношению к эталону, измеренному в новых условиях. Эталон должен содержать изотоп, который используется в опыте.

Сравнительные измерения, выполняемые в разное время, должны сопровождаться проверкой воспроизводимости показаний прибора. Для проверки воспроизводимости пользуются препаратом постоянной активности (содержащим какой-либо долгоживущий изотоп, например равновесную смесь ^{90}Sr и ^{90}Y), измеряя его каждый раз в тождественных условиях. При сравнительных измерениях нет необходимости вносить поправку на распад радиоактивного изотопа, если измерения, выполняемые в разное время, сопровождаются определением (скорости счета) эталона. Поскольку эталонный излучатель содержит тот же изотоп, что и испытуемый образец, то при этом устраняются искажения, вносимые распадом изотопа. Для снижения погрешности, вносимой неравномерным распределением радиоактивного вещества в объеме препарата, проводят несколько измерений, поворачивая препарат на 90, 180, 270° вокруг оси; полученные результаты усредняют. Если на практике не удастся осуществить совершенно одинаковые условия измерения, то при выполнении относительных измерений приходится учитывать ряд поправок. В каждом случае число необходимых поправок стараются свести к минимуму.

При сравнительных измерениях учитываются лишь поправки на разрешающее время счётной установки и фон, а при длительной работе – также и поправки на непостоянство воспроизводимости показаний прибора. Существенное достоинство относительных измерений заключается в их чрезвычайной простоте и высокой точности, если сравнение активности препаратов производится в строго тождественных условиях.

Рассмотрим метод относительного измерения радиоактивных препаратов β -излучателей. Он основан на сравнении двух одинаковых по форме и содержащих один и тот же изотоп β -радиоактивных препаратов, незначительно отличающихся по активности. Два препарата одинаковой формы и толщины, приготовленные на одинаковой подложке и содержащие один и тот же изотоп, имеют одинаковые коэффициенты счета ϕ . Для скоростей счета, не превышающих 5000 имп/мин, поправкой на разрешающее время можно пренебречь. Если известна абсолютная активность одного из таких препаратов (эталоны) A_0 , то абсолютная активность другого препарата может быть вычислена по формуле:

$$A_x = \frac{I_x}{I_0} A_0 \quad (37)$$

где I_x и I_0 - скорости счета (без фона) препарата, активность которого определяют, и эталона.

При сравнении препаратов с сильно различающимися активностями необходимо либо вводить в значения измеренной скорости счета поправку на разрешающее время, либо уменьшать скорость счета более активного препарата, увеличивая расстояние между препаратом и окном счетной трубки или помещая между препаратом и счетчиком поглотители. При изменении расстояния между препаратом и счетчиком вводят поправку на изменение геометрического коэффициента и рассчитывают абсолютную активность определяемого препарата:

$$A_x = \frac{I_x \eta_s}{\eta_x I_s} \quad (38)$$

где η_s и η_x - значения геометрического коэффициента для эталона и определяемого препарата. Предполагается, что все остальные условия измерения совершенно одинаковы. Геометрические коэффициенты вычисляются по стандартным формулам. Если для снижения регистрируемой скорости счета используются поглотители, то учитывают поправку на поглощение и вычисляют абсолютную активность определяемого препарата по формуле:

$$A_x = \frac{I_x K_s}{K_x I_s} \quad (39)$$

Поправку на поглощение β -излучения K находят путем расчета или с помощью графика.

Точное определение интенсивности α -излучения урана производится в так называемых «бесконечно тонких слоях», в которых можно пренебречь поглощением α -излучения в самом слое. В случае закиси-оксида урана такой слой содержит около 0,17 мг урана на 1 см². Однако приготовление таких слоев препарата представляет большие трудности. Более просто пользоваться методом сравнения активности порошковых проб с эталоном в α -насыщенных слоях. Излучение насыщенного слоя определяется только площадью поверхности и не зависит от толщины слоя. Толщина слоя насыщения зависит от энергии α -излучателя. В качестве эталона берут руду, в которой количество урана точно определено химическими методами. Обычно указывают содержание в руде закиси-оксида урана U₃O₈. Желательно, чтобы состав эталонного образца руды был близок к составу измеряемых образцов.