

ЭТАЛОНИРОВАНИЕ РАДИОАКТИВНЫХ ПРЕПАРАТОВ

*К. К. Аглинцев, Ф. М. Караваев, А. А. Константинов,
Г. И. Остроумова, Е. А. Хольнова*

В статье описаны методы и аппаратура, применяемые во Всесоюзном научно-исследовательском институте метрологии имени Д. И. Менделеева для точного измерения ряда дозиметрических характеристик радиоактивных препаратов: активности (калориметрический и ионизационный методы и метод абсолютного β -счета), γ -эквивалента (ионизационная камера с телесным углом 4π) и мощности дозы γ -излучения (нормальная ионизационная камера).

Указаны пределы измерений и точность результатов.

При практическом применении радиоактивных веществ необходимо знать основные физические характеристики используемых изотопов и основные параметры препаратов, изготовленных из этих изотопов.

К числу наиболее важных физических характеристик изотопов относятся: максимальная энергия и характер распределения энергии по β -спектру изотопа, длины волн и число квантов на акт распада для линий γ -спектров, а также число и значение энергий для конверсионных электронов. В случае сложных β -спектров указанные выше сведения должны быть приблизительно известны для каждого из компонентов β -спектра, так же как и их относительная интенсивность. Помимо данных, относящихся к β - и γ -спектрам, необходимо еще знать период полураспада радиоактивного изотопа.

К числу основных параметров радиоактивных препаратов относятся: активность препарата, размеры, вес, характер оболочки. Для препаратов, имеющих относительно большой объем, необходимы данные о распределении активности по объему в тех случаях, когда она распределена неравномерно.

Знание активности препарата изотопа с известными β - и γ -спектрами позволяет легко найти его полное излучение; однако при использовании препарата важнее знать его внешнее излучение, которое отличается от полного излучения вследствие самопоглощения излучения в препарате и поглощения в оболочке препарата.

Активность препаратов может быть измерена в кюри или в распадах в секунду. Действие γ -излучения препарата определяет создаваемую им дозу в рентгенах; кроме того, суждение о действии γ -излучения можно получить, если известен γ -эквивалент препарата в грамм-эквивалентах радия. Действие β -излучения может оцениваться в физических эквивалентах рентгена.

Для обеспечения единства меры в любой области измерений служат эталоны и эталонные установки, воспроизводящие единицы соответствующих физических величин, и система градуировки и поверки образцовых и рабочих измерительных приборов.

Воспроизведение единиц кюри и рентгена осуществляется с помощью эталонных установок, воспроизведение единицы грамм-эквивалента радия—с помощью государственного эталона радия, состоящего из двух препаратов радия, заключенных в тонкостенные стеклянные ампулы [1], [2].

Наиболее точными являются измерения γ -эквивалентов препаратов в грамм-эквивалентах радия.

Измерения γ -эквивалентов препаратов осуществляются на двух эталонных установках путем сравнения измеряемого препарата по

интенсивности γ -излучения с эталонным или образцовым препаратом радия.

Каждая из установок состоит из ионизационной камеры с телесным углом 4π , соединенной с электрометрическим устройством для измерения слабых токов. Для измерения препаратов в области от 1 до 1000 мг-экв. радия применяется ионизационная камера, состоящая из двух concentрически расположенных алюминиевых шаров со стенками толщиной 5 мм. Пространство между шарами является ионизационным объемом камеры. Величины ионизационных токов, создаваемых в камере препаратами с γ -эквивалентами в указанной выше области, лежат в пределах от $1,5 \cdot 10^{-11}$ до $1,5 \cdot 10^{-8}$ а. Для измерения таких токов нами применяется компенсационная схема по Таунсенду [3] с квадрантным электрометром чувствительностью до 800 делен/в и набором конденсаторов постоянной емкости. Схема установки приведена на рис. 1. Измеряемый препарат и образцовый препарат радия поочередно помещаются в камеру.

Значения γ -эквивалентов на данной установке измеряются с погрешностью от 0,5 до 2% [4].

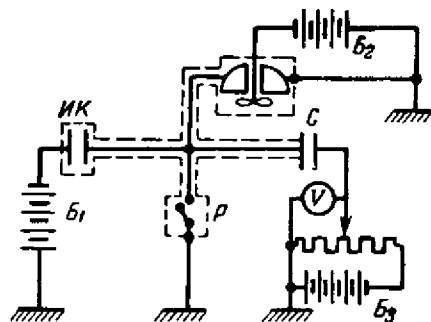


Рис. 1. Схема эталонной установки для измерений γ -эквивалентов препаратов от 1 до 1000 мг-экв. Ра.

ИК—ионизационная камера; B_1 , B_2 , B_3 —потенциальные батареи; Р—реле; С—образцовый конденсатор; V—вольтметр.

Измерения менее активных препаратов, создающих в камере ионизационный ток, сравнимый с током нормального рассеяния (фоном), производятся на другой установке, где применена так называемая компенсационная камера [5]. Последняя состоит из двух одинаковых цилиндрических латунных камер, разделенных свинцовым блоком и включенных навстречу одна другой; при

отсутствии в камерах препаратов разностный ток равен нулю. Измеряемый и образцовый препараты поочередно помещаются в одну из камер. Значения токов, создаваемых в камере препаратами с содержанием радия от 1 до 0,001 мг-экв. , лежат в пределах от $5 \cdot 10^{-11}$ и $5 \cdot 10^{-14}$ а. Для измерения этих токов нами используется усилитель постоянного тока по мостовой схеме на электрометрической лампе [5]. Схема установки приведена

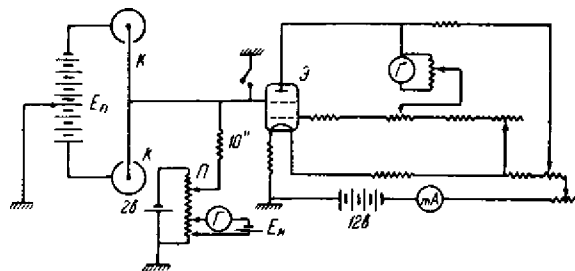


Рис. 2. Схема эталонной установки для измерений γ -эквивалентов препаратов от 1 до 0,001 мг-экв. Ра. К—компенсационная камера; П—потенциометр; E_n —нормальный элемент; Э—электрометрическая лампа; Г—гальванометр; мА—миллиамперметр; Еп—потенциальная батарея.

на рис. 2. В ней применен компенсационный метод измерения ионизационного тока. Падение напряжения, создаваемое ионизационным током на входном сопротивлении, компенсируется потенциалом, величина которого определяется по потенциометру. В этом случае усилитель используется лишь в качестве нулевого индикатора. Погрешности измерений γ -эквивалентов в области от 1 до 0,001 мг-экв. радия лежат в пределах от 1 до 5—8%.

В значения γ -эквивалентов, измеренных на описанных установках, вводятся поправки на геометрические размеры препаратов и на поглощение γ -лучей в препаратах («самопоглощение»).

Величина γ -эквивалента радиоактивного препарата зависит от условий измерения, главным образом от фильтрации γ -излучения, а также геометрии, типа и материала стенок ионизационной камеры. На рис. 3 и 4 показана зависимость γ -эквивалентов Co^{60} , $(\text{Zr}+\text{Nb})^{95}$, Ag^{110} и Sb^{124} от фильтрации γ -излучения различными толщинами свинца для широких (сплошные кривые) и узких (пунктирные кривые) пучков γ -лучей.

Измеренное значение γ -эквивалента препарата в г-экв. радия позволяет определить ионизационное действие этого препарата в рентгенах в час на расстоянии 1 м. Действи-

тельно, так как 1 г радия в платиновой оболочке толщиной 0,5 мм создает на расстоянии 1 м мощность дозы 0,84 р/час, то препарат в М г-эке. радия создаст в тождественных условиях мощность дозы 0,84 М р/час. Таким образом, γ -эквивалент препарата характеризует внешнее γ -излучение препарата в данных условиях.

Переход от величины γ -эквивалента данного препарата к величине его активности в кюри возможен лишь в том случае, если

считаются все β -частицы от данного радиоактивного источника в полном телесном угле 4π . «4 π счетчик» состоит из двух счетчиков, между которыми ставится радиоактивный источник. Для абсолютных измерений с помощью «4 π счетчика» нужно ввести следующие поправки:

1) на поглощение β -частиц в пленке, на которую нанесен радиоактивный источник; эту поправку легко определить на самом «4 π счетчике»;

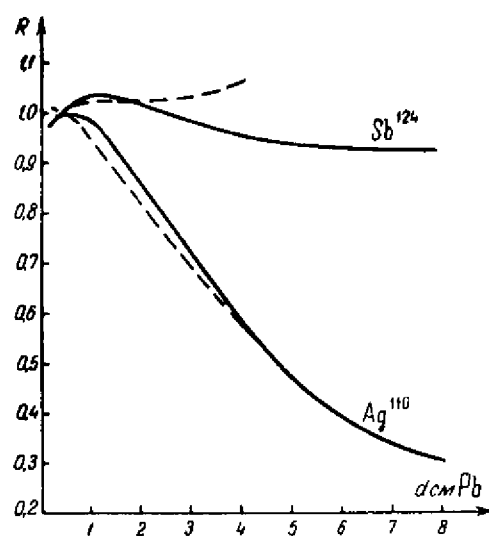
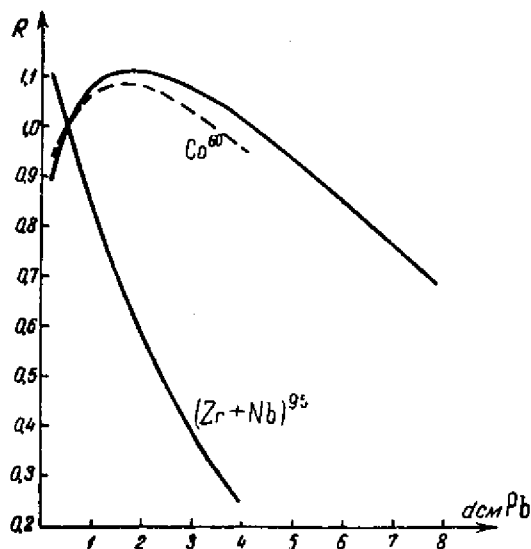


Рис. 3 и рис. 4. Зависимость γ -эквивалентов Co^{60} , $(\text{Zr}+\text{Nb})^{95}$, Ag^{110} и Sb^{124} от фильтрации. По оси абсцисс отложена толщина свинцового фильтра, по оси ординат—отношение величины γ -эквивалента при различных фильтрах к их величине при фильтре толщиной 0,5 см.

известны энергии γ -квантов, их число на акт распада данного радиоактивного вещества, эффективность ионизационной камеры для различных энергий γ -квантов, а также эффект самопоглощения γ -лучей в данном препарате.

Для абсолютных измерений активности в кюри нами применяется метод абсолютного счета β -частиц, а также калориметрический метод.

Задача абсолютного счета β -частиц с помощью счетчика, несмотря на свою принципиальную простоту, становится очень трудной, если необходимо достигнуть точности порядка 3%. Основные трудности возникают из-за того, что в непрерывном β -спектре всегда имеются β -частицы с малыми энергиями, которые легко поглощаются.

Метод абсолютного счета β -частиц с помощью «4 π счетчика» заключается в том, что

2) на самопоглощение β -частиц в самом источнике;

3) на просчет β -частиц из-за «мертвого времени» счетчика и конечной разрешающей способности регистрирующей радиотехнической схемы.

На рис. 5 представлена схема прибора с «4 π счетчиком». В нашем приборе употреблялись две конструкции «4 π счетчиков» [6], [7]. Первая из них состоит из двух срезанных по образующей цилиндрических счетчиков, между которыми поставлен источник. Этот «4 π счетчик» наполнялся смесью аргона с этиловым спиртом и служил для счета β -частиц в гейгеровском режиме. С помощью его можно было измерять препараты с активностью от $5 \cdot 10^{-8}$ до 10^{-10} кюри с точностью 2—4% для тонких препаратов.

Вторая конструкция «4π счетчика» представляет собой два полуцилиндра с источником между полуцилиндрами; он служил для счета β-частиц в пропорциональном режиме. Прибор для этого наполнялся метаном до давления 30—50 см рт. ст.

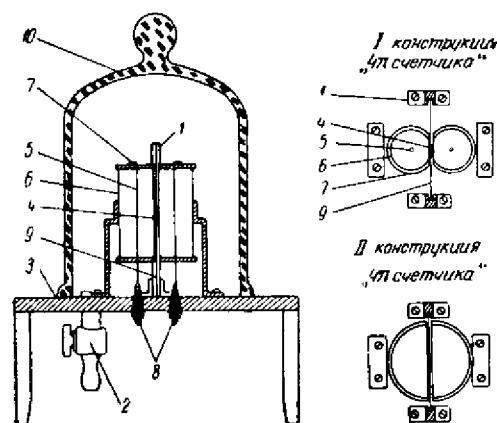


Рис. 5. Схема «4π счетчика».

1 — стойка; 2 — кран; 3 — латунный столик; 4 — препарат; 5 — нить счетчика; 6 — корпус счетчика; 7 — поллестироловая крышка; 8 — поллестироловые входы; 9 — алюминиевая фольга; 10 — стеклянный колокол.

С помощью «4π счетчика», работающего в пропорциональной области, можно измерять препараты с активностью от $5 \cdot 10^{-7}$ до $5 \cdot 10^{-11}$ кюри с точностью 1—3% для тонких препаратов.

Метод абсолютного счета β-частиц, использующий принцип определенного телесного угла, хотя и не очень точен, но из-за простоты и универсальности имеет большое распространение. Принцип метода очень прост. Радиоактивный препарат на тонкой подложке помещается перед счетчиком. Бета-частицы, летящие в пределах данного телесного угла, ограниченного калиброванной диафрагмой, достигают счетчика и регистрируются. Полное число β-частиц в угле 4π будет равно $N = \frac{4\pi}{\Omega} N_{\Omega}$, где N_{Ω} — число β-частиц, считаемых в данном телесном угле, а Ω — величина телесного угла.

Однако, для того чтобы с помощью данного метода определить абсолютное количество β-частиц, необходимо ввести ряд поправок [8].

Введением этих поправок сильно снижается точность данного метода, которая в лучшем случае достигает 4—6%. Наибольшая доля

погрешности падает на определение телесного угла. Этим методом в нашем приборе можно измерять β-активности порядка от 10^{-5} до 10^{-8} кюри.

Сопоставление двух методов абсолютного счета β-частиц показывает, что метод «4π счетчика» является более точным и в то же время принципиально более простым. Метод «4π счетчика» является также наиболее чувствительным из всех известных методов измерения β-активности. При большой серии измерений β-активных веществ можно легко проградуировать методом «4π счетчика» серийный торцевой счетчик для каждого отдельного радиоактивного изотопа.

Для сравнения двух вышеупомянутых методов с другими методами абсолютного счета β-частиц, например калориметрическим или ионизационным, необходимо точно знать количество радиоактивного вещества. Для того чтобы поправка на самопоглощение β-частиц в самом препарате была малой, необходимо брать всего лишь десятые или сотые доли миллиграмма радиоактивного вещества. Точное взвешивание такого малого количества на микровесах произвести трудно. Поэтому для определения количества радиоактивного вещества, испускающего кроме β-частиц γ-лучи, применяется сравнение γ-эквивалента источника с γ-эквивалентом другого, большего количества радиоактивного вещества, так называемого реперного количества. Реперное количество вещества бралось весом около 10 мг, а такое количество можно взвесить с достаточной точностью. Обычно изготовлялось несколько реперных количеств (пять-шесть); они сравнивались между собой и уже из них выбиралось наиболее хорошо согласующееся с другими.

Сравнение γ-эквивалента реперного количества радиоактивного вещества с γ-эквивалентом источника производилось с помощью сцинтилляционного γ-спектрометра. Метод γ-взвешивания очень надежен и всегда давал хорошие результаты.

В том случае, если радиоактивное вещество испускает только β-частицы, как, например, P^{32} , производится взвешивание сравнительно большого объема вещества, а потом от этого количества берется уже некоторая часть, вес которой не превышает долей миллиграмма.

Метод измерения активности с помощью эталонных установок со счетчиками стано-

вится неточным при толстых препаратах. Для таких препаратов с успехом применяется калориметрический метод, для которого толщина препарата не является помехой.

Калориметрические измерения активности радиоактивных препаратов основаны на

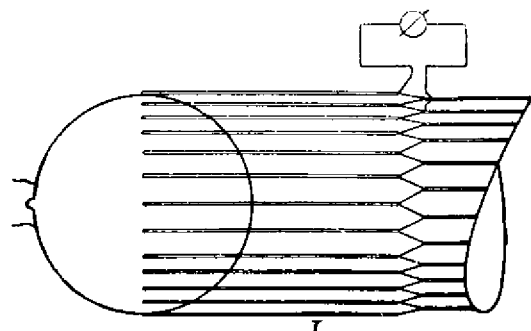


Рис. 6. Схема γ -калориметра.

A — тело калориметра; B — нагревательная катушка; C — пробка; D — полость для препарата; E — место крепления термодатчика; T — термодатчик.

том факте, что количество тепла, выделяющееся при поглощении излучений радиоактивного препарата, пропорционально числу распавшихся ядер.

Для измерения абсолютной активности радиоактивных препаратов нами были построены калориметрические установки двух

Гамма-калориметр состоит из двух одинаковых свинцовых шаров (рис. 6), укрепленных на эбонитовой подставке в термостате. Измеряемый препарат помещают в специальную полость одного из шаров калориметра и наблюдают за разностью температур между поверхностями шаров при помощи медь-константановой термопары.

Основные характеристики четырех имеющихся γ -калориметров приведены в табл. 1.

Чувствительность калориметров определялась в результате градуировки с помощью нагревательных катушек, находящихся внутри каждого шара.

Для того чтобы по измеренному калориметром количеству тепла оценить активность препарата, необходимо знать следующие

спектроскопические характеристики препарата: а) энергии $h\nu_i$ всех γ -линий, б) число α_i γ -квантов каждой энергии на акт распада, в) среднюю энергию β -спектра E_β . Так как размеры γ -калориметров не обеспечивают полного поглощения всех γ -лучей, то необходимо, кроме того, с достаточной степенью

Таблица 1

Характеристики	Калориметр			
	№ 1	№ 2	№ 3	№ 4
Наружный диаметр шаров, см	10	7	5,5	3,5
Толщина слоя поглощения, см	4,3	2,8	2,1	1,06
Вес шара, г	5944	2030	969	232
Количество термодатчиков	24	24	20	18
Время установления равновесия, часы	8	4	3	1,5
Чувствительность, 10^3 м.м./вт	6,44	7,58	13,3	19,6

типов: а) дифференциальный двойной калориметр для измерения активности препаратов по их γ -излучению; б) изотермический калориметр, основанный на принципе испарения жидкого азота, предназначенный для измерения активности препаратов по их β -излучению [9]—[11].

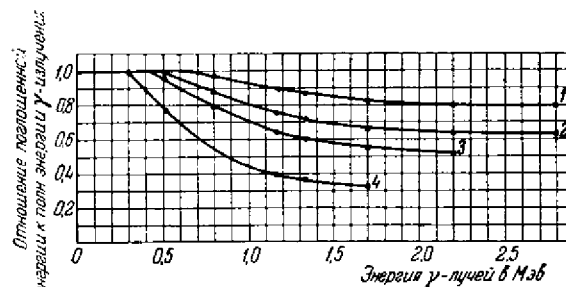


Рис. 7. Поглощение γ -лучей в γ -калориметрах.

1, 2, 3, 4 — номера калориметров.

точности знать, какая доля энергии γ -излучения поглощается калориметром. Эта величина — коэффициент p_i — для каждого калориметра и γ -квантов различных энергий находилась расчетным путем. Результаты расчета даны на рис. 7.

Соотношение, связывающее число актов распада N_0 в препарате и количество тепла W , выделяемое препаратом в 1 сек.

в калориметре, имеет вид

$$N_0 = \frac{W}{\sum h\nu_i \alpha_i p_i + E_\beta} = \frac{n}{j(\sum h\nu_i \alpha_i p_i + E_\beta)},$$

где n — отклонение гальванометра в миллиметрах шкалы; j — чувствительность калориметра в $мм/вт$; E_β — средняя энергия β -спектра.

Чувствительность построенных γ -калориметров позволяет измерять препараты активностью от нескольких десятков милликюри и выше.

Точность, с которой γ -калориметры позволяют определить абсолютную активность

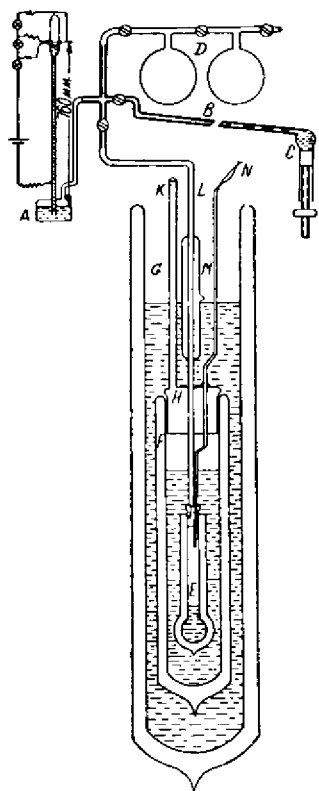


Рис. 8. Схема изотермического β -калориметра.

А — манометр; В — капилляр; С — ртутный насос; D — балластные колбы; E, F, G — сосуды Дьюара; J, H — шлифы; K, L — трубки, отводящие азот; M — вакуумный чехол; N — электронагреватель.

препаратов, составляет 3—5%; из них 2—3% обусловлены погрешностью расчета поглощения γ -лучей в калориметрах.

Калориметрическая установка для измерения активности препаратов по их β -излучению

состоит из трех коаксиальных сосудов Дьюара, заполненных жидким азотом (рис. 8). Тепло, выделяемое при поглощении β -частиц, излучаемых препаратом, расходуется на испарение жидкого азота. Объем газообразного азота, измеренный с помощью капилляра при 760 $мм$ рт. ст. и $20^\circ C$, является мерой количества тепла, выделенного источником в течение времени измерения. Чувствительность калориметра, найденная в результате градуировки, оказалась достаточной для измерений источников мощностью порядка 10^{-4} — 10^{-5} $вт$ (т. е. активности порядка 10 милликюри при средней энергии β -излучения в 1 $Мэв$).

Формула, связывающая измеренную β -калориметром энергию препарата и число актов распада в случае чистых β -излучателей, имеет простой вид:

$$N_0 = \frac{W}{E_\beta}.$$

Если препарат испускает и γ -лучи, то вводится поправка на их поглощение в препарате и в самом калориметре.

Погрешность, с которой β -калориметр позволяет определить активность β -излучателей, составляет 3—5%. Она складывается из погрешности измерения калориметром количества тепла (1—1,5%), а также погрешности измерения средней энергии β -частиц. Эта последняя для препаратов, имеющих простой β -спектр, составляет 2—3%; для препаратов со сложным β -спектром E_β известна с меньшей точностью.

Помимо одиночных измерений на β - и γ -калориметрах, нами проводились также комбинированные измерения на этих установках. Было показано, что комбинирование результатов измерений препарата в β - и γ -калориметрах позволяет определить активность препарата по известным относительным интенсивностям γ -линий. Число γ -квантов на акт распада определяется при этом одновременно с активностью препарата.

Для воспроизведения единицы рентгена в области излучений с энергией от 250 $кэв$ до 1,5 $Мэв$ создана эталонная установка [12] (рис. 9), состоящая из ионизационной камеры, заключенной в бак со сжатым воздухом, диафрагмирующего устройства, электроизмерительного устройства и высоковольтной батареи для питания камеры. Давление воздуха в баке может быть поднято до 15 $ат$,

что обеспечивает использование ионизирующей способности электронов с энергией до 1,5 Мэв. Схема установки приводится на рис. 10.

Расстояние между электродами 40 см, приложенная разность потенциалов до 15 кв.

Измеряемые γ -препараты помещаются в свинцовый блок диафрагмирующего уст-

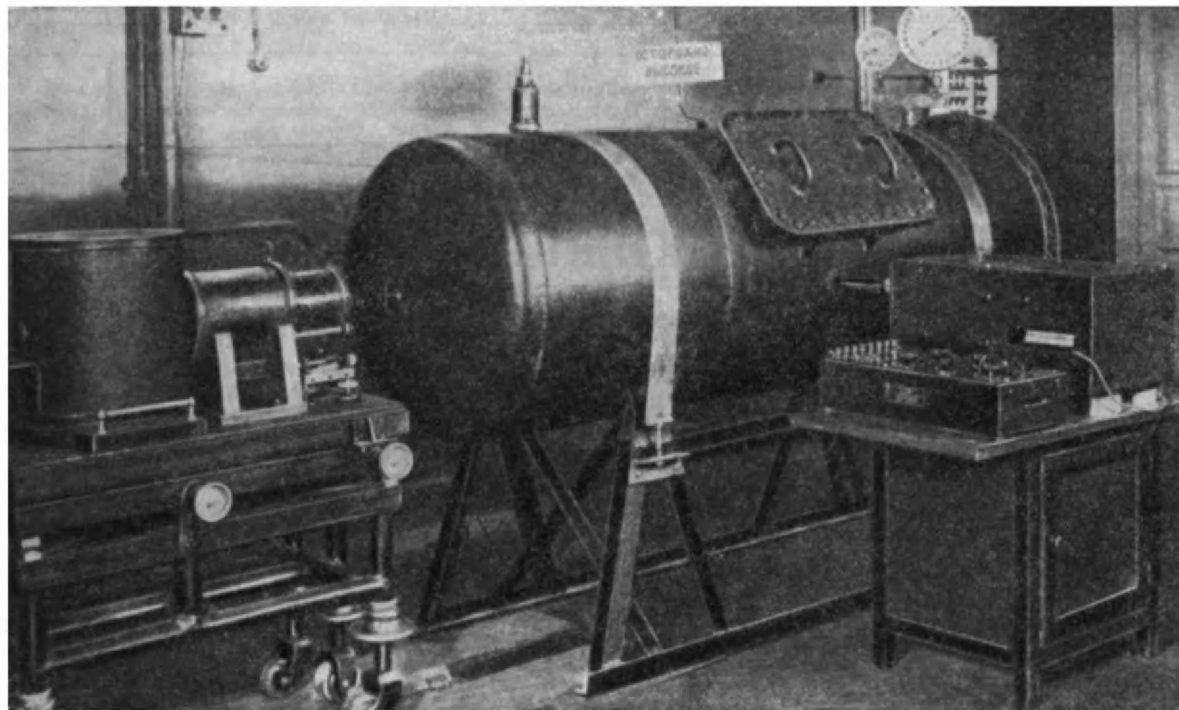


Рис. 9. Эталонная установка для измерений γ -излучения в рентгенах (общий вид).

Ионизационная камера плоского типа состоит из измерительного, двух защитных

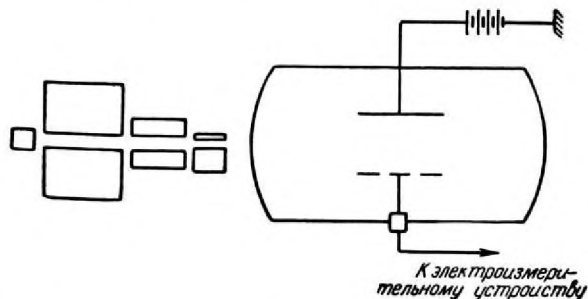


Рис. 10. Эталонная установка для измерений γ -излучения в рентгенах (схема).

и потенциального электродов и делителя напряжения для выравнивания электрического поля в измерительном объеме камеры.

ройства; пучок γ -лучей получается с помощью системы прокаланных диафрагм, диаметр которых выдержан с точностью до 0,01%. Измерение ионизационного тока производится с помощью мостовой схемы с электрометрической лампой.

Эталонная установка для измерения γ -лучей в рентгенах была сравнена на γ -излучении Cr^{51} с государственным эталоном рентгена; результаты измерений совпали в пределах 1,5%.

Применение описываемой эталонной установки позволяет определить в рентгенах внешнее γ -излучение препаратов с точностью около 3% и дать таким образом достоверное значение мощности дозы в p/час на определенном расстоянии от препарата.

Существенным условием эталонирования радиоактивных препаратов является отсутствие в них радиоактивных примесей. Для

контроля радиохимической чистоты нами и внешнее излучение препаратов. В табл. 2 применяется сцинтилляционный γ -спектро- приводится сводка данных по установкам.

Таблица 2

Наименование установки	Измеряемая величина	Пределы измерений	Погрешность измерений, %
Установка для измерения γ -эквивалентов	γ -эквивалент	1—1000 <i>мг-экв.</i> Ra 0,001 <i>мг-экв.</i> Ra	0,5—2 1—8
Счетчик с телесным углом 4π	Активность	$5 \cdot 10^{-7}$ — $5 \cdot 10^{-11}$ кюри	1—3
Счетчик с определенным телесным углом	»	10^{-5} — 10^{-8} кюри	2—4
γ -калориметр	»	0,05—10 кюри	3—5
β -калориметр	»	0,01—10 кюри	3—5
Эталонная установка для измерения γ -лучей в рентгенах	Мощность дозы	10—1000 <i>мкр/сек</i>	3

метр и производятся измерения периодов полураспада препаратов. Последние осуществляются методом последовательных измерений γ -эквивалентов и методом дифференциальной камеры.

Таким образом, описанные выше установки позволяют определять активность, полное

Последовательные измерения радиоактивных препаратов на всех описанных выше установках позволяют получить дозиметрические характеристики препаратов (активность, полное и внешнее излучение) и производить контроль результатов измерений различными методами.

ЛИТЕРАТУРА

1. Л. Н. Богоявленский, Труды ВНИИМ 26 (42), 3 (1939).
2. К. К. Аглинцев, Труды ВНИИМ 7 (52), 33 (1941).
3. К. К. Аглинцев, Дозиметрия ионизирующих излучений, Гостехиздат, 1950.
4. К. К. Аглинцев, Ф. М. Караваев, Труды ВНИИМ (в печати).
5. Ф. М. Караваев, Труды ВНИИМ (в печати).
6. Б. Росси, Г. Штауб, Ионизационные камеры и счетчики, ИЛ, Москва, 1951.
7. R. Sober, Ann. Phys. 7, 185 (1952).
8. А. А. Константинов, Труды ВНИИМ (в печати).
9. К. К. Аглинцев, Е. А. Хольнова, ДАН ХСVIII, 3, 357 (1954).
10. К. К. Аглинцев, Е. А. Хольнова, Труды ВНИИМ (в печати).
11. Е. А. Хольнова, Труды ВНИИМ (в печати).
12. К. К. Аглинцев, Г. П. Остроумова, М. Ф. Юдин, Труды ВНИИМ (в печати).