

МЕТОД ИЗМЕРЕНИЯ КОНЦЕНТРАЦИИ ^{90}Sr В БИОЛОГИЧЕСКИХ ОБЪЕКТАХ И ПРОБАХ ГРУНТА БЕЗ РАДИОХИМИИ

М. Д. Бондарьков ¹, Д. М. Бондарьков ², В. А. Желтоножский ², А. М. Максименко ¹,
Л. В. Садовников ², Н. В. Стрільчук ²

¹ *Международная радиэкологическая лаборатория
Славутицкого отделения Международного Чернобыльского центра, Славутич*
² *Институт ядерных исследований НАН Украины, Киев*

Описано методику нерадиохимического определения содержания ^{90}Sr , основанную на измерении бета- и гамма-спектров и применимую как для прижизненных измерений в малых биологических объектах (мышь, лягушка и т.д.), так и для рутинных радиэкологических исследований загрязненности почвы, растительности радиостронцием. Проведено сравнение описанной методики со стандартной радиохимической для биологических образцов и для проб почвы из Рыжего леса. Показано, что наблюдается хорошая корреляция результатов, полученных обоими методами.

Введение

При измерениях содержания ^{90}Sr нерадиохимическими методами чаще всего используется метод фильтрования электронов цезия и стронция тонкими фильтрами с последующим измерением с помощью подходящего радиометра остаточного спектра электронов ^{90}Y , который находится в равновесии с ^{90}Sr . Сравнивая результаты измерения калибровочного и исследуемого источника нетрудно получить искомое количество ^{90}Sr . Полученный результат будет близок к истинному, если заранее известно, что содержание ^{90}Sr в исследуемом образце превалирует или хотя бы сравнимо с содержанием других изотопов, например ^{137}Cs , который присутствует практически в каждой пробе из Чернобыльской зоны отчуждения. Но поскольку обычно цезия в Чернобыльских пробах намного больше, чем стронция, необходимо предпринять особые ухищрения, чтобы правильно учесть вклад цезия. Для этого следует учитывать целый ряд факторов. Бета-спектры ^{137}Cs и ^{90}Sr практически совпадают [4], но отрезав их с помощью поглощающих фильтров, мы все же не решаем проблему правильной оценки содержания иттрия по остаточному спектру электронов, поскольку регистрация этих электронов будет происходить на фоне одновременной регистрации излучения, которое будет все же проходить через фильтр и создавать ненужный фон. В случае, если образец содержит в основном ^{137}Cs и $^{90}\text{Sr} + ^{90}\text{Y}$, это будут гамма-кванты 661 кэВ, характеристическое рентгеновское излучение бария 31,8 ÷ 37,5 кэВ, возникающее вследствие процесса внутренней конверсии для М4 перехода ^{137}Ba , а также вклада тормозного излучения электронов, тормозящихся в поглотителе. Указанные методические трудности в общем разрешимы (см. [1]), описанная методика вполне работоспособна и даже весьма чувствительна, но, к сожалению, требует неоднократных измерений одного и того же объекта с фильтрами различной толщины и различных материалов, т.е. существенно выигрывая в стоимости одного такого анализа по сравнению с радиохимическим определением радиостронция, мы все же не достигаем необходимой для работы с биологическими объектами скорости проведения одного анализа. Для достижения необходимой экспрессности и надежности применили метод одновременного измерения бета- и гамма-спектров исследуемого образца.

Методика эксперимента

Очевидно, что уменьшить вероятность регистрации гамма-квантов 661 кэВ с целью уменьшения фона, затрудняющего измерения бета-спектра исследуемого образца, можно, применив по возможности тонкий детектор. Идеальная толщина детектора равнялась бы

пробегу бета-электронов иттрия в материале детектора. На рис. 1 и рис. 2 приведены бета-гамма-спектры мышей из Рыжего леса, измеренные с помощью сцинтилляционных пластиковых детекторов толщиной 1 и 0,1 мм соответственно.

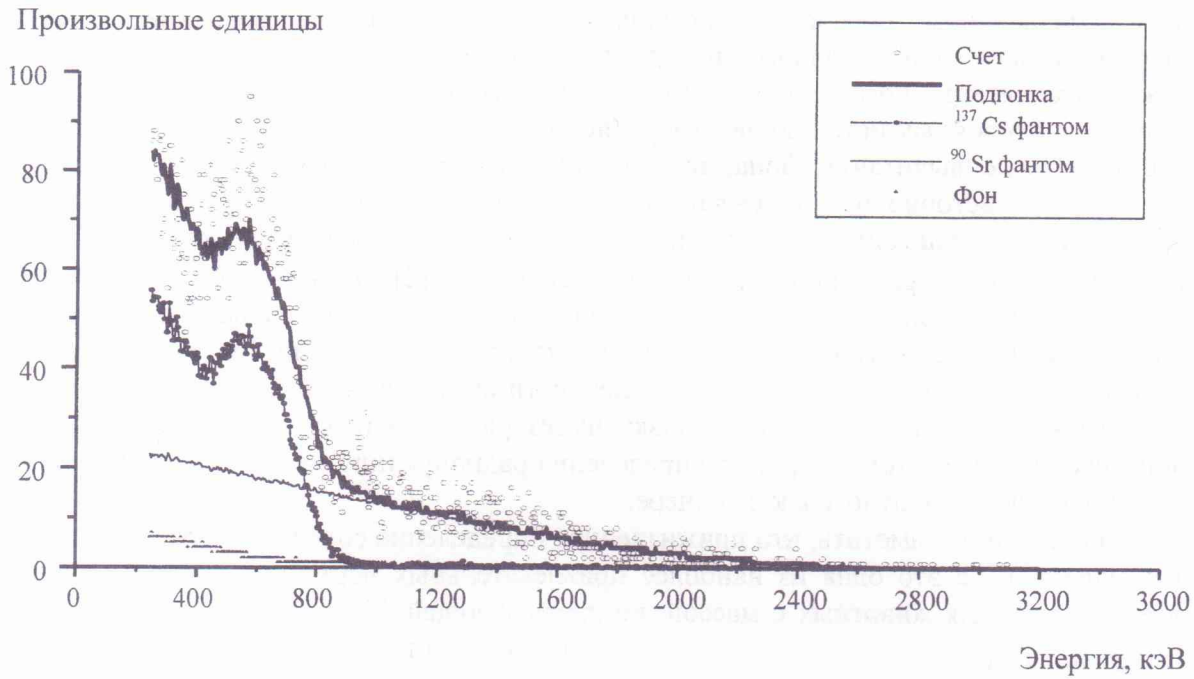


Рис. 1. Экспериментальный бета-гамма-спектр (точки), подгоночный и калибровочные спектры (сплошная линия) для пластикового детектора толщиной 1 мм.

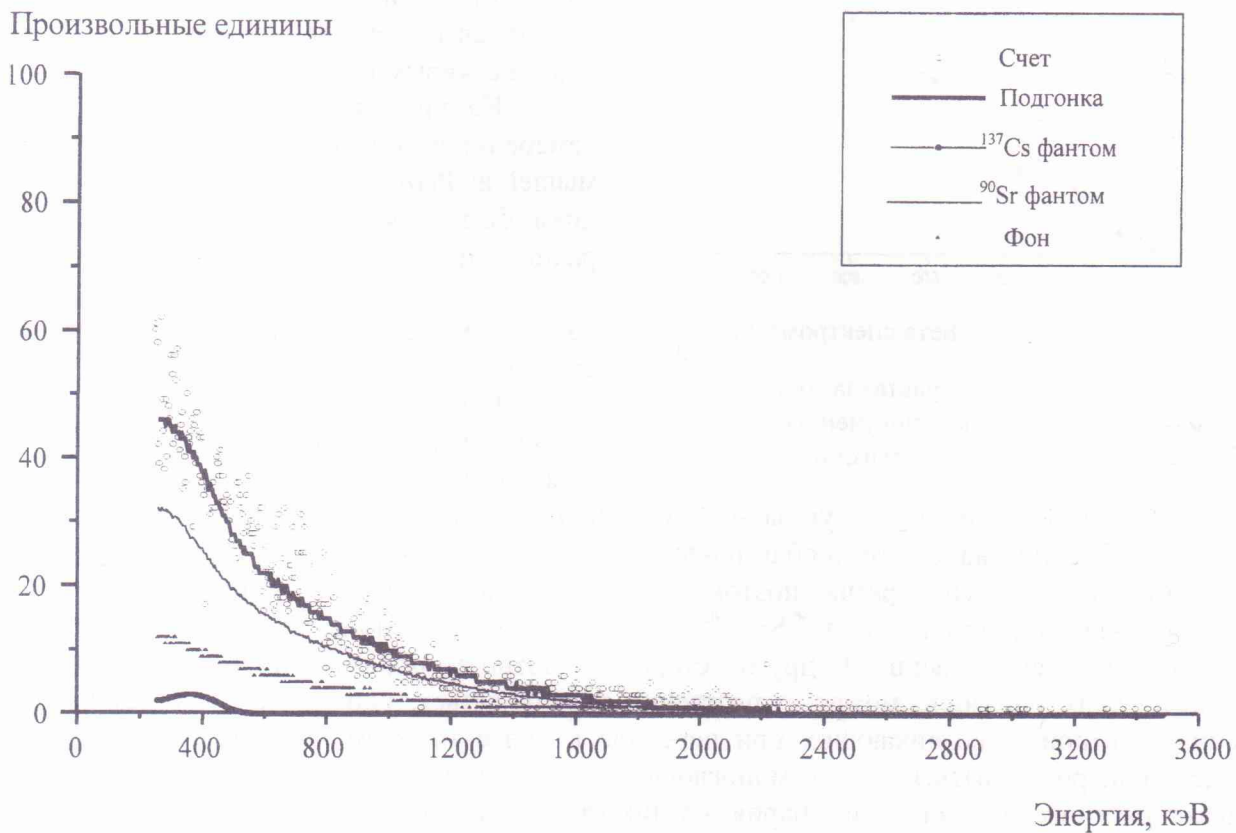


Рис. 2. Экспериментальный бета-гамма-спектр (точки), подгоночный и калибровочные спектры (сплошная линия) для пластикового детектора толщиной 0,1 мм.

Как видно, при толщине 0,1 мм «совместный пик» [4] гамма-квантов 661 кэВ и конверсионных электронов бария уже не наблюдается. Но даже сцинтилляционный слой толщиной 1 мм обеспечивает в 30 раз меньшую эффективность регистрации гамма-излучения 661 кэВ по сравнению с эффективностью регистрации электронов такой же энергии. Дальнейшая обработка экспериментального спектра проводилась методом вписывания в него калибровочного спектра, т.е. в данном случае спектров, полученных на этом же спектрометре, но с использованием калибровочных источников ^{137}Cs и $^{90}\text{Sr} + ^{90}\text{Y}$. Спектры калибровочных источников измерялись в течение суток с высокой статистической точностью. После вычитания фона, измеренного также с высокой точностью, спектры калибровочных источников описывались кубическими сплайнами и в дальнейшем использовались для описания экспериментальных спектров подобно тому, как мы поступали ранее при описании рентгеновских и гамма-спектров [2]. В качестве калибровочных источников для биологических объектов использовались специально изготовленные фантомы массой 5 и 20 г, содержащие известное количество ^{137}Cs или $^{90}\text{Sr} + ^{90}\text{Y}$ и имеющие плотность около 1 г/см^3 , что соответствует плотности исследуемых биологических объектов. Исползованный в работе метод калибровки имеет ряд недостатков. В частности, он не в полной мере учитывает топографию распределения радионуклидов в организме животного и текущее положение животного в контейнере.

Следует также заметить, что прижизненное определение содержания радиостронция в живых существах, а это одна из наиболее привлекательных черт описываемой методики, возможна только для животных с массой, не превышающей 40 - 50 г. В противном случае

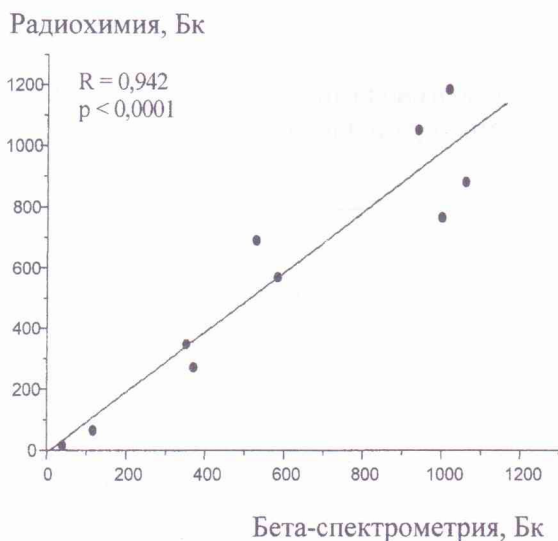


Рис. 3. Сравнение результатов определения активности ^{90}Sr в мышах, полученных методом бета-спектрометрии и радиохимии.

быстро растет роль плохо контролируемых процессов самопоглощения бета-электронов внутри исследуемого образца. Учет самопоглощения в этом случае требует дополнительных измерений уже на спектрометре из сверхчистого германия с бериллиевым окном, что неудобно при работе с живыми объектами.

На рис. 1 и 2 приведены результаты измерения и подгонки бета-гамма-спектров мышей из Рыжего леса. Для проверки методики было проведено также стандартное радиохимическое определение содержания ^{90}Sr в тех же мышах. Сравнение результатов, полученных с помощью радиохимии и спектрометрии, показано на рис. 3.

Как видно, наблюдается довольно хорошая корреляция результатов, полученных обоими методами.

В случае применения указанной методики для определения содержания ^{90}Sr в неживых объектах, например пробах почвы, мы уже не ограничены временем измерения и объемом исследуемого образца, поэтому в качестве калибровочных источников удобнее брать "тонкие" источники ^{137}Cs и $^{90}\text{Sr} + ^{90}\text{Y}$, т.е. источники, самопоглощение бета-электронов для которых несущественно. С другой стороны, плотность образцов почвы, в отличие от биологических образцов, может существенно варьироваться. Однако процесс самопоглощения электронов, возникающих при переходе к более толстым исследуемым образцам, может контролироваться по самопоглощению характеристического излучения ^{137}Ba . Характеристическое излучение бария возникает в связи с тем, что около 8 % ^{137}Cs распадается посредством процесса внутренней конверсии М4 гамма-перехода на К-оболочке с последующим излучением рентгеновских квантов K_{α} с энергией 31,8 - 37,5 кэВ (см. на

рис. 4 фрагмент гамма-спектра почвы из Рыжего леса). По своей проникающей способности такое рентгеновское излучение примерно соответствует [4] электронам с энергией 3 - 4 МэВ, т.е. самопоглощение для бета-электронов ^{90}Y будет примерно таким же, как и для характеристического излучения бария. Коэффициент же самопоглощения для характеристического излучения бария легко вычислить, исходя из измерений интенсивности K_{α} -излучения бария и сопутствующего более жесткого гамма-излучения 661 кэВ. Поскольку самопоглощение для гамма-излучения 661 кэВ несущественно [4], то, сравнивая отношение интенсивностей рентгеновского K_{α} - и гамма-излучения 661 кэВ в "тонких" источниках и исследуемых образцах, легко получаем коэффициент самопоглощения для электронов ^{90}Y , но, очевидно, что требуются дополнительные измерения гамма-спектров исследуемых образцов.

По результатам гамма-спектрометрии на спектрометре с полупроводниковым детектором из сверхчистого германия с входным бериллиевым окном оценивалось также содержание в пробах таких изотопов, как ^{137}Cs , ^{40}K , и радионуклидов из естественного ториевого ряда. Для анализа данных измерений разработана программа комплексного анализа полученных спектров.

Все это позволило надежно выделить бета-компоненту изотопа ^{90}Y и с достаточно хорошей точностью (с погрешностью менее 20 %) учесть самопоглощение электронов ^{90}Y в пробах с различной плотностью, а также качественно отличающихся по составу органической компоненты.

В целом нами измерено около 1000 проб почвы из Рыжего леса. Для контроля определения активности ^{90}Sr в 24 пробах после бета-спектрометрии содержание ^{90}Sr определялось также радиохимическими методами. На радиохимию были отобраны пробы как с поверхностных слоев, так и по глубине до 30 см. На рис. 5 представлена корреляция результатов определения содержания ^{90}Sr в образцах почвы из Рыжего леса, полученных с помощью стандартной радиохимии и бета-гамма-спектрометрии по методике, описанной выше.

В таблице представлены те же результаты в цифровой форме. Видна прекрасная корреляция результатов

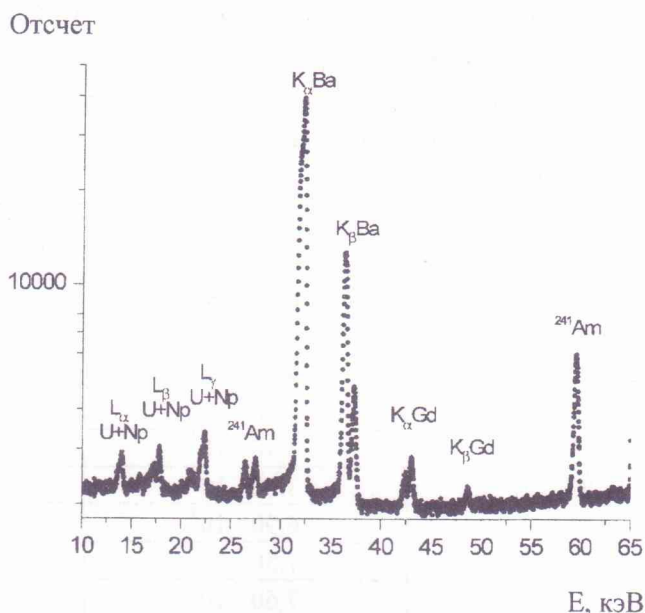


Рис. 4. Фрагмент гамма-спектра, полученного от образца почвы из Рыжего леса.

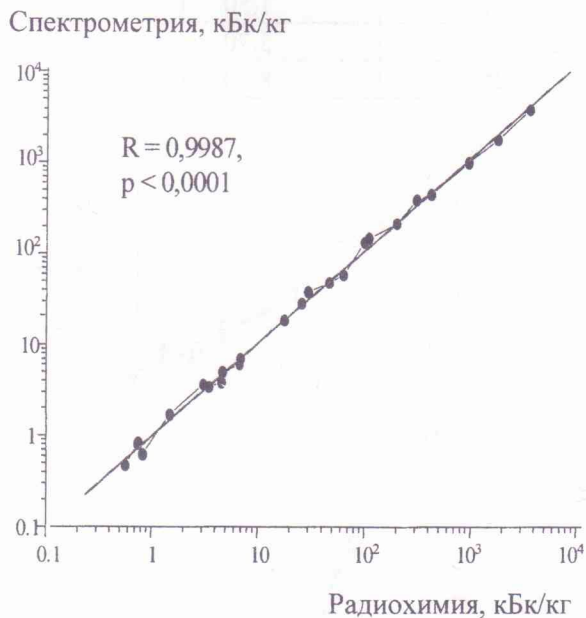


Рис. 5. Сравнение результатов определения активности ^{90}Sr в образцах почвы методами бета-спектрометрии и радиохимии: {Dev.}.

обоих методов {Dev.}, где отклонение рассчитано по формуле

$$Dev. = [(Радиохимия) - (Спектрометрия)] / (Спектрометрия).$$

При этом погрешность радиохимии для первых четырех слоев не более 15 %, для нижних – 25 %; а погрешность результатов спектрометрии для верхних четырех слоев < 10 %, а нижних < 20 %.

Точка отбора и глубина, см	Удельная активность, Бк / кг		Отклонение Dev.
	Радиохимия	Спектрометрия	
1 – 145, 0 – 2	$9,50 \cdot 10^5$	$1,01 \cdot 10^6$	- 0,06
2 – 4	$3,10 \cdot 10^5$	$3,88 \cdot 10^5$	- 0,20
4 – 7	$1,10 \cdot 10^5$	$1,48 \cdot 10^5$	- 0,26
7 – 10	$4,70 \cdot 10^4$	$4,75 \cdot 10^4$	- 0,01
10 – 15	$3,00 \cdot 10^4$	$3,79 \cdot 10^4$	- 0,21
15 – 20	$6,90 \cdot 10^3$	$7,02 \cdot 10^3$	- 0,02
20 – 25	$7,50 \cdot 10^2$	$8,04 \cdot 10^2$	- 0,07
25 – 30	$7,60 \cdot 10^2$	$8,36 \cdot 10^2$	- 0,09
2 – 145, 0 – 2	$1,80 \cdot 10^6$	$1,80 \cdot 10^6$	0,00
2 – 4	$4,20 \cdot 10^5$	$4,50 \cdot 10^5$	- 0,07
4 – 7	$1,00 \cdot 10^5$	$1,33 \cdot 10^5$	- 0,25
7 – 10	$2,60 \cdot 10^4$	$2,80 \cdot 10^4$	- 0,07
10 – 15	$4,70 \cdot 10^3$	$4,96 \cdot 10^3$	- 0,05
15 – 20	$3,10 \cdot 10^3$	$3,62 \cdot 10^3$	- 0,14
20 – 25	$3,50 \cdot 10^3$	$3,41 \cdot 10^3$	0,03
25 – 30	$4,60 \cdot 10^3$	$3,84 \cdot 10^3$	0,20
3 – 145, 0 – 2	$3,60 \cdot 10^6$	$3,83 \cdot 10^6$	- 0,06
2 – 4	$2,00 \cdot 10^5$	$2,14 \cdot 10^5$	- 0,07
4 – 7	$6,40 \cdot 10^4$	$5,84 \cdot 10^4$	0,10
7 – 10	$1,80 \cdot 10^4$	$1,85 \cdot 10^4$	- 0,03
10 – 15	$6,80 \cdot 10^3$	$6,03 \cdot 10^3$	0,13
15 – 20	$1,50 \cdot 10^3$	$1,68 \cdot 10^3$	- 0,11
20 – 25	$5,70 \cdot 10^2$	$4,73 \cdot 10^2$	0,21
25 – 30	$8,30 \cdot 10^2$	$6,16 \cdot 10^2$	0,35

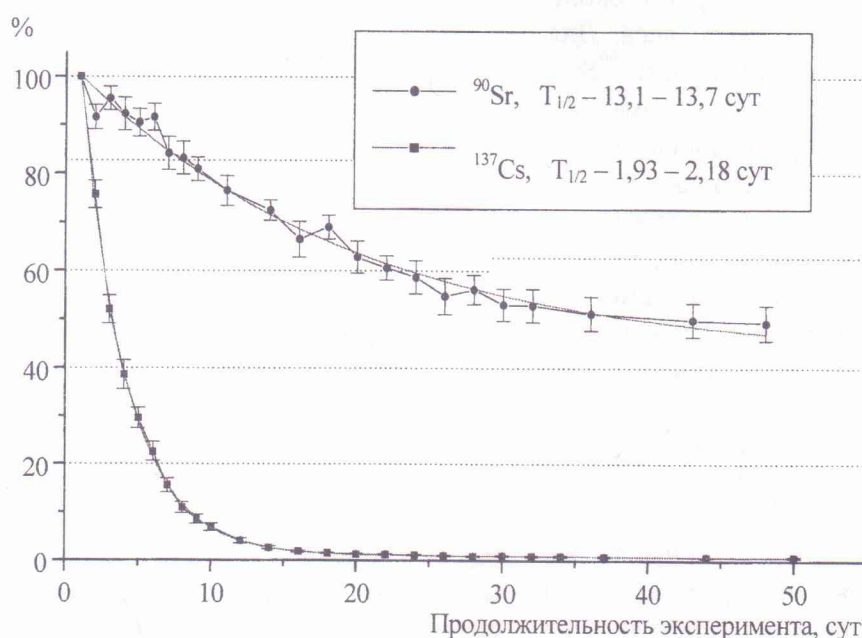


Рис. 6. Динамика выведения ^{90}Sr и ^{137}Cs из организма рыжей полевки.

Выводы

Описанная методика, несмотря на определенные ограничения, может быть эффективно использована при измерении содержания ^{90}Sr как в биологических так, и небологических образцах. Причем, если в случае проб почвы достигается фактически только экономия средств и времени, то для биологических объектов открывается принципиально новый путь прижизненного определения загрязненности радиостронцием, что в свою очередь позволяет решать целый ряд задач, ранее практически недоступных экспериментальному изучению. В качестве иллюстрации на рис. 6 приведены результаты по определению скорости вывода ^{137}Cs и ^{90}Sr из организма рыжей полевки, полученные нами по описанной выше методике [3].

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Бондарьков М.Д., Гащак С.П., Желтоножский В.А. и др. Об измерении ^{90}Sr нерадиохимическими методами. // Науч. и техн. аспекты международного сотрудничества в Чернобыле. - 2001. - Вып. 3. - С. 424 – 427.
2. Vishnevsky I.N., Bondarkov M.D., Zheltonozhky V.A. // Izvestija RAN. Ser. fiz. – 1995. – Vol. 59. - P. 78.
3. Бондарьков М.Д., Гащак С.П., Горячая Ю.А. и др. Оценка параметров выведения ^{137}Cs и ^{90}Sr из организма мелких грызунов нерадиохимическим методом // Науч. и техн. аспекты международного сотрудничества в Чернобыле. - 2001. – Вып. 3. – С. 409 - 416.
4. Browne E., Firestone R.B. Table of Radioactive Isotopes / Ed. by Shirley V.S. – Canada: John Wiley & Sons, Inc. – 1986.

МЕТОД ВИМІРЮВАННЯ КОНЦЕНТРАЦІЇ ^{90}Sr У БІОЛОГІЧНИХ ОБ'ЄКТАХ І ПРОБАХ ҐРУНТУ БЕЗ РАДІОХІМІЇ

М. Д. Бондарьков, Д. М. Бондарьков, В. О. Желтоножський, А. М. Максименко,
Л. В. Садовніков, М. В. Стрільчук

Описано методику нерадіохімічного визначення вмісту ^{90}Sr , засновану на вимірюванні бета- і гамма-спектрів, що може бути застосована як для прижиттєвих вимірювань у малих біологічних об'єктах (миші, жаби тощо), так і для рутинних радіоекологічних досліджень забруднення ґрунту, рослинності радіостронцієм. Проведено порівняння описаної методики зі стандартної радіохімічною для біологічних зразків і для проб ґрунту з Рудого лісу. Показано, що спостерігається добра кореляція результатів, отриманих обома методами.

THE METHOD OF ^{90}Sr CONCENTRATION MEASUREMENT IN BIOLOGICAL OBJECTS AND SOIL SAMPLES WITHOUT RADIOCHEMISTRY

M. D. Bondarkov, D. M. Bondarkov, V. A. Zheltonozhsky, L. V. Sadovnikov,
A. M. Maksimenko, N. V. Strilchuk

Following is the description of the methods of ^{90}Sr non-radiochemical measurement, which are based on beta and gamma spectrum measurement which are applicable both for life-time measurement in small biological objects (mice, frogs etc.) and also for routine radioecological research of the contamination of soil, flora etc. with radiostrontium. The comparison of the described methods with standard radiochemical ones for biological and soil samples of Red Forest was carried out. It is shown that proper correlation of both methods results were obtained.

Поступила в редакцію 19.03.02,
после доработки – 20.09.02.