

## **Измерение удельной активности $^{238}\text{Pu}$ в растворе при международных ключевых сличениях**

**А. В. ЗАНЕВСКИЙ, М. А. РАСЬКО, Т. Е. САЗОНОВА, И. А. ХАРИТОНОВ**

*Рассмотрены два метода измерения удельной активности радионуклида  $^{238}\text{Pu}$  в растворе, использованные ВНИИМ им. Д. И. Менделеева в ключевых сличениях национальных эталонов единицы активности радионуклидов: метод  $4\pi(\text{PC})\alpha\text{-LX}$ -совпадений и метод определенного телесного угла. Результаты измерений удельной активности  $^{238}\text{Pu}$  двумя методами совпали в пределах оцененной комбинированной неопределенности 0,15 %.*

**Ключевые слова:** *ключевые международные сличения, раствор радионуклида, удельная активность, плутоний-238, измерение активности, метод совпадений, определенный телесный угол.*

*Two methods of measurement of the specific activity of a radionuclide  $^{238}\text{Pu}$  in a solution used at the VNIIM in key comparisons of national standards of radionuclide activity unit are described: the  $4\pi(\text{PC})\alpha\text{-LX}$ -coincidence method and the defined solid angle method. The results of the  $^{238}\text{Pu}$  activity concentration measurement by two methods are in agreement within the limits of estimated combined uncertainty 0,15 %.*

**Key words:** *international key comparisons, radionuclide solution, specific activity (concentration), plutonium-238, activity measurement, coincidence method, defined solid angle.*

Ключевые сличения национальных эталонов используются для установления их эквивалентности, необходимой для взаимного признания измерительных сертификатов национальных лабораторий [1]. Консультативный комитет МБМВ по ионизирующим излучениям (CCRI) проводит два типа клю-

чевых сличений национальных эталонов единицы активности радионуклидов: многосторонние — типа CCRI(II)-K2 и двусторонние — типа BIPM.RI(II)-K1. Сличения типа CCRI(II)-K2 проводятся с целью согласования абсолютных методов измерений, используемых в национальных лабораториях, и

выявления систематических погрешностей методов. Сличения типа ВРМ. RI(II)-K1 позволяют национальным лабораториям согласовывать размер единицы активности для интересующих их нуклидов в индивидуальном порядке.

При планировании сличений типа ССRI(II)-K2 учитываются перспективы развития метрологии ионизирующих излучений в целом и индивидуальные потребности национальных лабораторий в обеспечении единства в этой области измерений. Радионуклиды разделены на группы с учетом их применения, в частности, в медицине, при градуировке приборов радиационной защиты и спектрометров, в радиационном контроле объектов окружающей среды.

В период 1999—2001 гг. в перечень сличений ССRI(II)-K2 был включен радионуклид  $^{238}\text{Pu}$ , который широко используется в технологиях высокого уровня и в качестве индикатора загрязненности окружающей среды радионуклидами техногенного происхождения. В России выпускают рентгеновские источники общепромышленного назначения типа ИРИПЛ с  $^{238}\text{Pu}$ , нейтронные источники типа PuBe, поэтому ключевые сличения  $^{238}\text{Pu}$  представляют интерес с практической точки зрения.

Плутоний-238 распадается с испусканием  $\alpha$ -частиц с энергией около 5,5 МэВ на возбужденный уровень, который разряжается с испусканием электрона конверсии. Вследствие конверсии возникает рентгеновское излучение со средней энергией фотонов 16,4 кэВ и интенсивностью 10,7(2) % на распад [2]. По данным [3] активность  $^{238}\text{Pu}$  измеряют тремя методами счета  $\alpha$ -частиц: в определенном телесном угле, в пропорциональном 4 $\pi$ -счетчике, в жидком сцинтилляторе. Кроме того, используют метод 4 $\pi$  $\alpha$ - $\gamma$ -совпадений с радионуклидом  $^{241}\text{Am}$  в качестве «метки». Эти методы имеют неопределенность, связанную с необходимостью введения поправок, например, на поглощение  $\alpha$ -частиц в пленке-подложке и самом источнике.

В лаборатории ВНИИМ для измерения активности  $^{238}\text{Pu}$  и  $^{239}\text{Pu}$  разработан метод 4 $\pi$  $\alpha$ -LX-совпадений с использованием пропорционального 4 $\pi$ -счетчика и сцинтилляционного детектора с кристаллом NaI(Tl). Для измерения активности этих радионуклидов в источниках в лаборатории также применяется метод определенного телесного угла с детектором на основе кристалла ZnS. В 2001 г. ВНИИМ принял участие в ключевых сличениях ССRI с помощью раствора  $^{238}\text{Pu}$ . Ампула с раствором PuCl<sub>4</sub> в 1 М HCl с удельной активностью около 360 Бк/г была получена из НФЛ (Великобритания). В ключевых сличениях использованы оба метода измерений.

**Приготовление источников.** Источники из раствора  $^{238}\text{Pu}$  готовили на тонких позолоченных с двух сторон пленках-подложках. Подложки изготавливали из рентгеновской пленки (целлулоида) с поверхностной плотностью 15—20 мг/см<sup>2</sup>, общая поверхностная плотность подложки с золотым покрытием составляла 60—70 мг/см<sup>2</sup>. Чтобы получить тонкий и равномерный активный слой, перед нанесением раствора радионуклида пленки обрабатывали инсулином. Приготовленные источники сушили на воздухе. Источники изготавливали как из исходного раствора, так и из разбавленного с коэффициентом разбавления 3,245. Масса нанесенного на пленку исходного раствора была в пределах 10—20 мг, разбавленного — 50—90 мг. Источники с активностью около 10<sup>4</sup> Бк использовали в методе определенного телесного угла.

**Измерение активности.** Метод 4 $\pi$ (PC) $\alpha$ -LX-совпадений, как известно, дает высокую точность, если эффективность регистрации одного из совпадающих излучений близка к 100 % и каждый из детекторов чувствителен лишь к одному из совпадающих излучений. Эти требования легко выполняются при измерении активности  $^{238}\text{Pu}$  методом 4 $\pi$  $\alpha$ -LX-со-

впадений. Эффективность регистрации  $\alpha$ -частиц в 4 $\pi$ -счетчике близка к 100 %, а энергия  $\alpha$ -частиц (5 МэВ) во много раз превышает энергию LX-фотонов (16 кэВ), что делает пропорциональный счетчик нечувствительным к LX-излучению. Детектор LX-фотонов — сцинтилляционный счетчик с кристаллом NaI(Tl) высотой 1 мм с тонким бериллиевым окном — не чувствителен к  $\alpha$ -излучению. Таким образом, совпадающие излучения полностью разделены в детекторах.

Трудности применения метода 4 $\pi$  $\alpha$ -LX-совпадений в случае  $^{238}\text{Pu}$  обусловлены малыми энергией и интенсивностью LX-фотонов. Конструкция установки совпадений ВНИИМ выбрана с расчетом максимального увеличения эффективности регистрации LX-излучения. Изготовленный из алюминия 4 $\pi$ -счетчик с высотой каждой половины 25 мм, имеет окно из тонкой алюминиевой фольги (6 мкм) со стороны, которая обращена к сцинтилляционному счетчику с кристаллом NaI(Tl), защищенным тонким бериллиевым окном (0,2 мм). Таким образом достигаются максимальные приближение источника к детектору LX-фотонов и эффективность регистрации LX-излучения.

Наполнение 4 $\pi$ -счетчика — смесь Ar + 10 % CH<sub>4</sub> при давлении 0,03 МПа. Анод 4 $\pi$ -счетчика изготовлен из позолоченной вольфрамовой проволоки диаметром 0,05 мм. Уровень дискриминации в  $\alpha$ -канале устанавливали 1000 кэВ. В энергетическом «окне» 10—30 кэВ регистрировали LX-фотоны. Мертвое время в каждом канале составляло 1,2 ± 0,1 мкс, разрешающее время канала совпадений было 0,916 ± ± 0,003 мкс. Максимальная эффективность регистрации  $\alpha$ -частиц в 4 $\pi$ -счетчике составила 99,8 %.

В процессе измерений проверяли правильность учета влияния разрешающего и мертвого времени установки на результат измерения при повышенной скорости счета в  $\alpha$ -канале (10<sup>3</sup>—5 · 10<sup>4</sup> с<sup>-1</sup>). Необходимость проверки обусловлена тем, что при измерении активности  $^{238}\text{Pu}$  методом 4 $\pi$  $\alpha$ -LX-совпадений источники изготавливали с активностью в диапазоне 5 · 10<sup>3</sup>—10<sup>4</sup> Бк из-за необходимости регистрации LX-излучения слабой интенсивности. Стабильность работы установки при изменении скорости счета проверяли измерением активности  $^{198}\text{Au}$  в золотой фольге методом 4 $\pi$  $\beta$ - $\gamma$ -совпадений в течение примерно двух периодов полураспада  $^{198}\text{Au}$  (семь дней). По данным измерений рассчитали период полураспада  $^{198}\text{Au}$  и получили 2,6951 ± 0,0010 сут, что согласуется с его табличным значением 2,6943 ± ± 0,0008 сут. Проверка показала, что работа установки в указанном диапазоне активности не зависит от скорости счета в канале 4 $\pi$ -счетчика, а значения мертвого и разрешающего времени определены с удовлетворительной точностью.

В табл. 1 приведены составляющие неопределенности метода 4 $\pi$  $\alpha$ -LX-совпадений и комбинированная неопределенность.

Таблица 1

Составляющие неопределенности метода 4 $\pi$  $\alpha$ -LX-совпадений

Влияющий фактор	Неопределенность, %
Статистика	0,02
Взвешивание	0,05
Мертвое время	—
Фон	0,15
Период полураспада	0,001
Разбавление	0,03
Комбинированная неопределенность	0,16

Как видно из табл. 1, наибольшая составляющая неопределенности связана с измерением фона в LX-канале. Фон составлял примерно 1 % от скорости счета LX-фотонов,

его измеряли со средним квадратическим отклонением 10 % до и после установки каждого источника. Поскольку наблюдалось небольшое систематическое изменение фона в процессе измерений, составляющую неопределенности, связанную с измерением фона, приняли равной в 0,15 % вместо 0,1 %.

**Метод определенного телесного угла.** Детектор  $\alpha$ -частиц в установке изготовлен на основе ZnS(Ag) толщиной менее 100 мкм и диаметром 80 мм. Измерения проводили в вакууме при расстоянии между детектором и источником 297,99 мм, с диафрагмой диаметром 58,275 мм, т. е. в телесном угле  $2,373 \cdot 10^{-2}$  ср. Уровень дискриминации устанавливали 200 кэВ, мертвое время  $1,45 \pm 0,03$  мкс, фон около 0,04 имп./с при средней скорости счета  $\alpha$ -канала  $20 \text{ с}^{-1}$ .

В табл. 2 приведены составляющие неопределенности рассматриваемого метода и комбинированная неопределенность, вычисленная в соответствии с [4].

Таблица 2

Составляющие неопределенности метода определенного телесного угла

Влияющий фактор	Неопределенность, %
Статистика	0,03
Взвешивание	0,06
Мертвое время	—
Фон	0,025
Геометрический фактор	0,05
Эффективность	0,05
Период полураспада	0,001
Разбавление	0,03
Отбор источников в группу с максимальной активностью с использованием критерия Фишера	0,07
Нестабильность канала	0,05
Комбинированная неопределенность	0,14

Сличения методов определенного телесного угла и  $4\pi\alpha$ -LX( $\gamma$ )-совпадений выполняли также с использованием радионуклида  $^{241}\text{Am}$ . На отсутствие систематических неопределенностей в первом методе указывает совпадение результатов измерений в пределах 0,1—0,2 %. Следует отметить, что для измерения активности  $^{238}\text{Pu}$  изготовили семь ис-

точников. Это сделали с целью выявления систематической погрешности, обусловленной неконтролируемыми потерями активности в процессе высыхания раствора на поверхности источника. При статистической обработке результатов измерений использовали критерий Фишера.

**Заключение.** Во ВНИИМ разработан метод  $4\pi(\text{PC})\alpha$ -LX-совпадений для измерения активности  $^{238}\text{Pu}$  и  $^{239}\text{Pu}$ , который наряду с методом определенного телесного угла применяли для нахождения удельной активности  $^{238}\text{Pu}$  в растворе в рамках полномасштабных ключевых сличений, организованных МБМВ в 2001 г. Результаты измерений удельной активности  $^{238}\text{Pu}$  двумя методами приведены в табл. 3.

Таблица 3

Результаты измерений удельной активности  $^{238}\text{Pu}$  двумя методами

Метод	Результат, кБк / г, на 01.04.2001 г.	Неопределенность, %
$4\pi\alpha$ -LX-совпадений	361,5	0,16
Определенного телесного угла	361,3	0,15

Как следует из табл. 3, результаты измерений согласуются в пределах оцененной неопределенности. По-видимому, метод  $4\pi\alpha$ -LX-совпадений можно рекомендовать как метод, дающий наивысшую точность при измерении активности  $^{238}\text{Pu}$  и  $^{239}\text{Pu}$ .

## ЛИТЕРАТУРА

1. **Mutual recognition** of national measurement standards and of calibration and measurement certificates issued by national metrology institutes / CIPM.BIPM. — Paris, 14 October 1999.
2. **Lagoutine F., Coursol N., Legrand J.** Table des radio-nucléides. / CEA-LMRI, F-91190. — Gif-sur-Yvette, 1985.
3. **Mann W.B., Rytz A., Spornol A.** Radioactivity Measurements. — N.-J.: Pergamon Press, 1991.
4. **Guide** to the Expression of uncertainty in Measurement: first edition / ISO. — Switzerland, 1993.

Дата одобрения 30.05.2002 г.