

## E X P E R I M E N T Á L N A T E C H N I K A

### Možnosti merania extrémne nízkych aktivít $\beta$ žiaričov plynovým prietokovým GM-detektorom v geometrii $2\pi$

M. ZADUBAN

*Rádiobiologické laboratórium Katedry biológie Prírodovedeckej fakulty Univerzity  
P. J. Šafárika, Košice*

Opisujú sa možnosti merania extrémne nízkych aktivít tuhých i kvapalných  $\beta$  žiaričov v geometrii  $2\pi$  za použitia plynového prietokového GM-detektora. Na kalibráciu sa využila prírodná rádioaktivita draslíka ( $^{40}\text{K}$ ). Diskutuje sa o medznej mernej aktivite, o medznej celkovej aktivite a o dobe merania z hľadiska početnosti pozadia, početnosti vzorky a chyby merania. Hodnoty medzných aktivít, získané pomocou  $^{40}\text{K}$ , možno použiť i pri meraní aktivity štiepnej zmesi uránu.

Prítomnosť umelých rádionuklidov v biosfére nás núti z hľadiska hygienického i rádioekologického vypracovať účinné metódy na meranie najmä nízkych aktivít, ktoré sú bežnými meracími metódami (napríklad zo stopovacej techniky) nemerateľné alebo ich meranie je zafaržené značnou chybou. Jednou z možností merania extrémne nízkych aktivít je použitie plynových prietokových GM-detektorov v geometrii  $2\pi$  [1, 2]. Pri absorpčnom a antikoincidenčnom tienení je nízke pozadie o hodnote 0,02—5,0 imp./min. [3, 8]. Zväčšovaním plochy detektora vzrastá hodnota početnosti pozadia za súčasného zvyšovania citlivosti merania [4]. Veľkoplošným metánovým prietokovým detektorom o ploche 600 cm<sup>2</sup> možno napríklad merať  $5 \cdot 10^{-15}$   $\mu\text{Ci}/\text{ml}$  s chybou  $\pm 20$  % pri dvadsaťminútovom meraní [5, 6]. Plynový prietokový detektor možno použiť i na kontinuálne meranie aktivity [7].

### Experimentálna časť

#### *Chemikálie*

Chlorid draselný p. a., chlorid sodný p. a., hydroxid draselný p. a., metylalkohol p. a. (výrobky Lachema, n. p.). Soli sa pred použitím prečistili kryštalizáciou a rozotreli sa na jemný prášok.

#### *Prístroje*

Plynový prietokový GM-detektor s možnosťou merania aktivity v geometrii  $2\pi$ , typ NSB 211, v okienkovom usporiadaní o priemere 5 cm a plošnej váhe okienka menšej než 1,2 mg/cm<sup>2</sup>. Vyhodnotenie sa robilo elektronickým zariadením typu NHZ 617 (výrobky Tesla Pardubice-Přemyšlení). Vzorky sa merali v niklových miskách o priemere 5 cm a výške stien 0,5 cm. Náplňou pre detektor bola plyná zmes 0,6 % propán-butánu a 99,4 % argónu. Prietok plynu bol regulovateľný.

### Pracovný postup

Nastavenie pracovných optimálnych podmienok sa urobilo pomocou štandardu  $^{204}\text{Tl}$ . Hodnota početnosti pozadia sa merala pre každý kanál bez absorpčného i antikoincidenčného tienenia, ako aj s ním. Za optimálnych meracích podmienok sa sledovali tieto závislosti:

1. vplyv zmeny prietoku plynného prostredia na detekčnú účinnosť,
2. stanovenie celkovej detekčnej účinnosti použitím tuhých i kvapalných vzoriek o rôznej hrúbke,
3. stanovenie lokálnej celkovej detekčnej účinnosti,
4. sledovanie krátkodobej i dlhodobej stability,
5. stanovenie medznej aktivity.

Doba merania bola rôzna v závislosti od meranej aktivity vzorky. Každá vzorka sa merala trikrát.

### Výsledky a diskusia

Kalibračné merania sa robili pomocou draselných solí v zmesi s príslušnou sodnou solou v tuhom stave alebo v roztoku. Draslík je zmesou troch nuklidov:  $^{39}\text{K}$ ,  $^{40}\text{K}$  a  $^{41}\text{K}$ , z ktorých  $^{40}\text{K}$  je nestabilný. Tento emituje  $\beta^-$  častice (89 %) s energiou 1,35 MeV a tvorby  $^{40}\text{Ca}$  a záchyтом elektrónu K (11 %) sa tvorí  $^{40}\text{Ar}$ , pričom sa emitujú  $\gamma$  kvantá s energiou 1,46 MeV. Jeden gram prírodnej zmesi izotopov draslíka obsahuje 0,0119 %  $^{40}\text{K}$  a má aktivitu  $8 \cdot 10^{-10}$  Ci [9, 10]. Dochádza v ňom k 29,6 rozpadom za sekundu alebo 1776 rozpadom za jednu minútu (t. j. 1580,64  $\beta$  častíc/min. a 195,36  $\gamma$  kvánt/min.). Vhodnosť použitia draslíka na kalibračné účely spočíva v jeho dostupnosti, jednoduchej príprave štandardov, vhodnej energii  $\beta$  častíc a minimálnej chybe vzniknutej pri riedení. Nevýhodou je nízka merná aktivita.

Vyhodnotenie meraní sa robilo z hľadiska merania absolútnych aktivít pomocou

Tabuľka 1

Vplyv prietoku plynu na celkovú detekčnú účinnosť  $2\pi$  detektora

Prietok [ml/min.]	Pozadie [imp./min.]	Početnosť štandardu [imp./min.]	CDŮ [%]
20	2,5	230,4	45,91
		225,2	
		227,6	
40	2,5	231,0	46,44
		226,0	
		224,4	
60	2,3	223,2	45,66
		226,6	
		225,8	
80	2,25	232,3	46,20
		228,0	
		222,0	
100	2,8	227,7	46,15
		224,8	
		232,0	

stanovenia tzv. celkovej detekčnej účinnosti (CDÚ) detektora, definovanej ako pomer počtu zaregistrovaných častíc k celkovému počtu častíc emitovaných vzorkou za jednotku času:

$$CDÚ = \frac{N_{zmer.}}{N_{teor.}} \cdot 100 \%, \quad (1)$$

$$N_{teor.} = A \cdot m_K \cdot k \cdot 60 \cdot 3,7 \cdot 10^{10} \text{ častíc/min.},$$

kde  $A$  = aktivita v Ci/g,

$m_K$  = množstvo draslíka v g,

$k$  = oprava na rozpad.

Pre stanovenie hodnoty  $CDÚ_\beta$  na základe známeho množstva draslíka dostávame vzťah

$$CDÚ_\beta = \frac{N_{zmer.}}{1580,64 \cdot m_K} \cdot 100 \%. \quad (2)$$

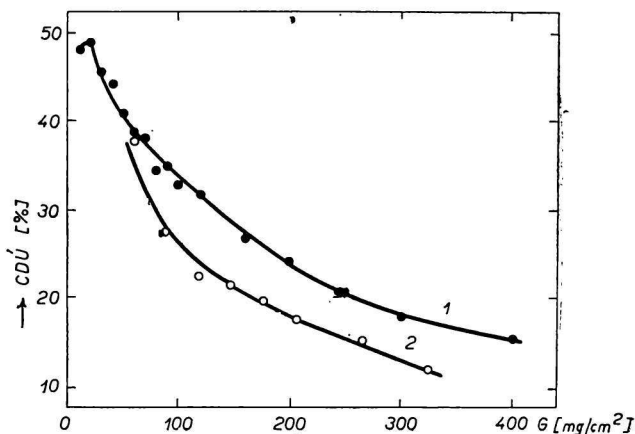
Pretože merná aktivita draslíka má hodnotu  $8 \cdot 10^{-10}$  Ci/g, vzťah (2) vyjadruje (pri  $CDÚ = \text{konšt.}$ ) závislosť zmeranej početnosti od množstva draslíka. Ak sa pri meraní použije draselná soľ v množstve  $G_K$  gramov o a molekulovej váhe  $M_K$ , vzťah (2) dostane tvar

$$CDÚ_\beta = \frac{N_{zmer.} \cdot M_K \cdot 100}{1580,64 \cdot 39,1 \cdot G_K} \%. \quad (3)$$

Na hodnotu  $CDÚ$  môže mať za určitých podmienok vplyv hodnota prietoku detekčného prostredia. Táto závislosť je v tab. 1.

Kombinácia absorpčného i antikoincidenčného tienenia umožňuje dosiahnuť priemernú hodnotu pozadia  $2,22 \pm 0,26$  imp./min. Táto hodnota sa získala meraním pozadia po dobu 37 dní, v ktorých sa pozadie meralo na začiatku, v strede a na konci 8 až 10-hodinovým zapnutím prístroja (dĺžka merania bola 30 až 60 minút).

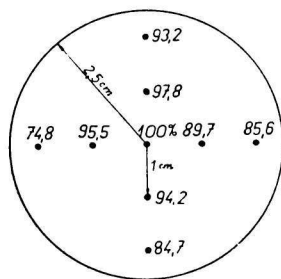
Pri rovnakej mernej aktivite má na hodnotu  $CDÚ$  vplyv predovšetkým hrúbka meranej vzorky. Závislosť sa sledovala dvoma spôsobmi, a to pri konštantnej celkovej aktivite a konštantnej mernej aktivite tuhých i kvapalných vzoriek. Závislosť je na obr. 1. Maximálna hodnota  $CDÚ$  48,97 % je pri hrúbke 20 mg/cm<sup>2</sup> tuhej vzorky.



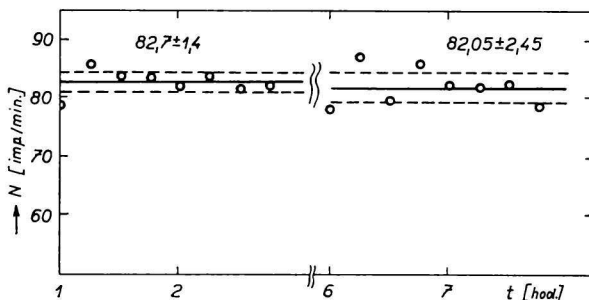
Obr. 1. Zmena hodnoty  $CDÚ$  v závislosti od plošnej váhy. 1. tuhá vzorka; 2. kvapalná vzorka.

CDÚ kvapalných vzoriek je nižšia, pretože sa v menšej miere uplatňuje vplyv sekundárneho žiarenia.

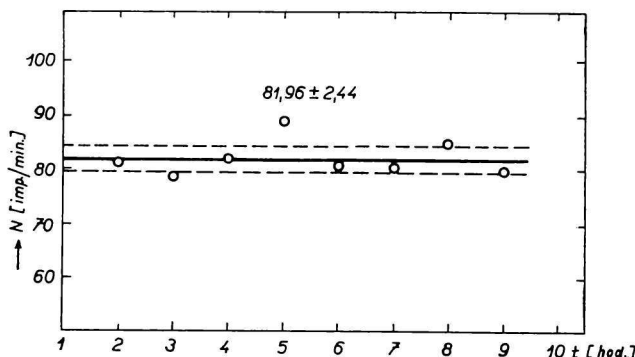
Rozdiely v hodnote lokálnej CDÚ nie sú veľké (obr. 2). Rozdiel medzi maximálnou a minimálnou hodnotou je 25,2 %. Priemerná hodnota CDÚ získaná z hodnôt lokálnej CDÚ je 23,25 % (zdroj žiarenia o priemere 4,9 mm, hrúbke 2,2 mm až 210 mg/cm<sup>2</sup>). Z obr. 1 odčítaná hodnota CDÚ pre danú plošnú váhu je 22,7 % (pre zdroj žiarenia o priemere 50 mm), čo je v dobrej vzájomnej zhode. V použitých meracích miskách možno merať aktivitu tuhej vzorky o maximálnom množstve 8 g a kvapalnej vzorky 4 ml. Krátkodobá i dlhodobá stabilita zariadenia je dobrá (obr. 3 a 4).



Obr. 2. Lokálna celková detekčná účinnosť pre  $2\pi$  detektor.



Obr. 3. Krátkodobá stabilita.



Obr. 4. Dlhodobá stabilita.

Pri známej hodnote početnosti pozadia možno stanoviť medznú aktivitu, ktorá je definovaná [11]:

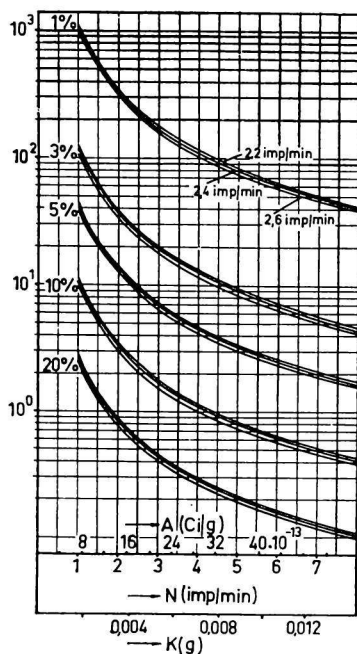
1. Background equivalent activity (BEA) — ako aktivita rádionuklidu, ktorej početnosť sa rovná početnosti pozadia (najmä pre nízke hodnoty pozadia),
2. ako aktivita, ktorá za jednotku času spôsobuje určitú početnosť na pozadie.

Výberom vyhovujúcej chyby merania pre danú početnosť možno s dostatočnou presnosťou pri malej meracej dobe merať aktivitu rádove pČi. Na obr. 5 je vyjadrená závislosť doby merania od početnosti pre rôznu chybu merania, vypočítaná na základe vzťahu uvedeného v [12].

Tabuľka 2

Hodnoty medznej mernej aktivity a medznej celkovej aktivity  
v závislosti od početnosti vzorky

Početnosť vzorky [imp./min.]	Medzná aktivita	
	merná [Ci/g]	celková [Ci]
1,0	$0,79 \cdot 10^{-12}$	$1,55 \cdot 10^{-12}$
2,2	$1,74 \cdot 10^{-12}$	$3,41 \cdot 10^{-12}$
3,0	$2,36 \cdot 10^{-12}$	$4,64 \cdot 10^{-12}$
4,0	$3,15 \cdot 10^{-12}$	$6,19 \cdot 10^{-12}$
6,0	$4,73 \cdot 10^{-12}$	$9,29 \cdot 10^{-12}$

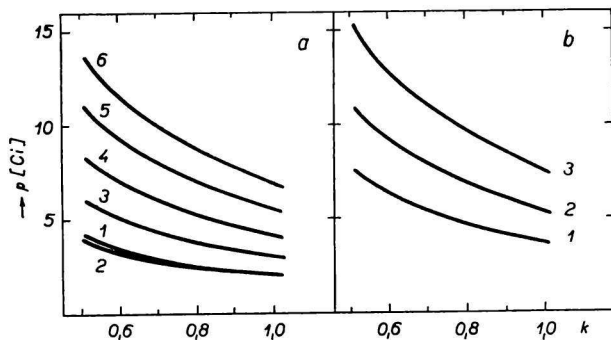


Obr. 5. Závislosť doby merania od početnos-  
ti vzorky pre rôznu hodnotu pozadia a chy-  
bú merania.

Za predpokladu stanovenia medznej aktivity ako BEA pri  $N_p$  2,2 imp./min. je medzná merná aktivita  $1,7 \cdot 10^{-12}$  Ci/g, resp. medzná celková aktivita  $3,4 \cdot 10^{-12}$  Ci (vzorka o plošnej váhe  $100 \text{ mg/cm}^2$  až  $1,9625 \text{ g}$ ). Pre iné početnosti vzorky sú hodnoty medznej aktivity uvedené v tab. 2.

Pri rovnakej početnosti vzorky hodnota medznej celkovej aktivity závisí od plošnej váhy vzorky a charakteru rozpadu rádionuklidu. Na obr. 6 až 8 sú jej hodnoty uvedené pre rôznu početnosť. Optimálna hrúbka na dosiahnutie najnižšej medznej aktivity je pri plošnej váhe  $20 \text{ mg/cm}^2$ , keď pri tuhých vzorkách pre  $k = 1,0$  a pre  $N_v = 1 \text{ imp./min.}$  je  $0,9 \text{ pCi}$ ;  $N_v = 2,2 \text{ imp./min.}$  je  $2,0 \text{ pCi}$ ;  $N_v = 3 \text{ imp./min.}$  je  $2,75 \text{ pCi}$ ;  $N_v = 4 \text{ imp./min.}$  je  $3,7 \text{ pCi}$  atď.

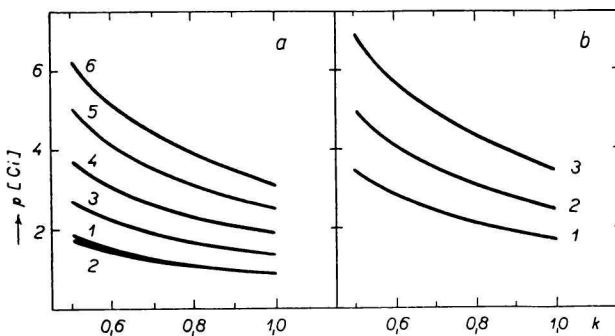
Pre orientáciu úrovne aktivity je veľmi vhodné stanovenie celkovej aktivity  $\beta$



Obr. 6. Medzná celková aktivita pre  $N_p$  2,2 imp./min. a  $N_v$  1,0 imp./min. v závislosti od rozpadovej schémy a plošnej váhy vzorky.

a) Tuhá vzorka: 1. 10 mg/cm<sup>2</sup>; 2. 20 mg/cm<sup>2</sup>; 3. 100 mg/cm<sup>2</sup>; 4. 200 mg/cm<sup>2</sup>; 5. 300 mg/cm<sup>2</sup>; 6. 400 mg/cm<sup>2</sup>.

b) Kvapalná vzorka: 1. 100 mg/cm<sup>2</sup>; 2. 200 mg/cm<sup>2</sup>; 3. 300 mg/cm<sup>2</sup>.



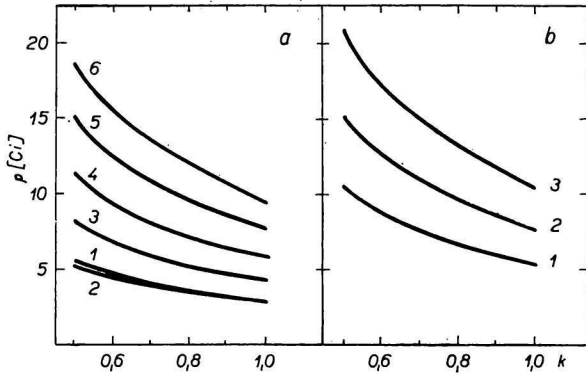
Obr. 7. Medzná celková aktivita pre  $N_p$  2,2 imp./min. a  $N_v$  2,2 imp./min. v závislosti od rozpadovej schémy a plošnej váhy vzorky.

a) Tuhá vzorka: 1. 10 mg/cm<sup>2</sup>; 2. 20 mg/cm<sup>2</sup>; 3. 100 mg/cm<sup>2</sup>; 4. 200 mg/cm<sup>2</sup>; 5. 300 mg/cm<sup>2</sup>; 6. 400 mg/cm<sup>2</sup>.

zmesi štiepných produktov uránu. Pri neznámej zmesi stanovenie celkovej aktivity na základe kalibračných meraní jednotlivých zložiek tvoriacich zmes je zdĺhavé a značne nepresné, pretože nie sú známe pomery zložiek v zmesi. Preto je výhodnejšie použiť na kalibráciu <sup>40</sup>K, najmä pre štiepnu zmes staršiu než 150–200 dní [13–15]. Závislosti na obr. 6 až 8 možno potom využiť na stanovenie medznej aktivity aj pre štiepnu zmes. Na obr. 9 je závislosť meranej aktivity od chyby merania pre vzorku o plošnej váhe 100 mg/cm<sup>2</sup> a  $k$  1,0 ( $k_{0K} = 0,89$ ).

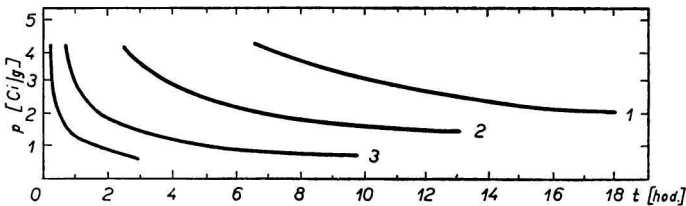
Uvedené experimentálne výsledky takisto možno použiť pri radiometrickom stanovení množstva draslíka v kvapalných i tuhých vzorkách (obzvlášť pri jeho malých koncentráciách), ďalej na stanovenie minimálnej aktivity rádionuklidu a absolútne

aktivity kvapalných i tuhých vzoriek metódou interného alebo externého štandardu ( $E_{\beta} \gg 1,1 \text{ MeV}$ ) v stopovacej rádionuklidovej technike, pri štúdiu izotopového efektu draslíka, pri stanovení rozpustnosti draselných solí a pod.



Obr. 8. Medzná celková aktivita pre  $N_p$  2,2 imp./min. a  $N_v$  3,0 imp./min. v závislosti od rozpadovej schémy a plošnej váhy vzorky.

- a) Tuhá vzorka: 1. 10 mg/cm<sup>2</sup>; 2. 20 mg/cm<sup>2</sup>; 3. 100 mg/cm<sup>2</sup>; 4. 200 mg/cm<sup>2</sup>; 5. 300 mg/cm<sup>2</sup>; 6. 400 mg/cm<sup>2</sup>.  
 b) Kvapalná vzorka: 1. 100 mg/cm<sup>2</sup>; 2. 200 mg/cm<sup>2</sup>; 3. 300 mg/cm<sup>2</sup>.



Obr. 9. Závislost hodnoty medznej mernej aktivity od doby merania pre rôznu chybu merania.

1. 3 %; 2. 5 %; 3. 10 %.

## ВОЗМОЖНОСТЬ ИЗМЕРЕНИЯ ОЧЕНЬ НИЗКИХ $\beta$ -АКТИВНОСТЕЙ ГАЗОПРОТОЧНЫМ СЧЕТЧИКОМ ГЕЙГЕРА В $2\pi$ ГЕОМЕТРИИ

М. Задубан

Радиобиологическая лаборатория Кафедры биологии Естественного факультета  
 Университета им. П. Й. Шафарика, Кошице

Для измерения очень низких активностей твердых и жидких  $\beta$ -излучателей был применен газопоточный счетчик Гейгера в  $2\pi$  геометрии с поглотительной защитой и защитой с помощью схемы антисовпадений. При величине фона 2,22 имп/мин можно измерять образцы диаметром 50 мм. Максимальный вес твердого образца 8 г, макси-

мальный объем жидкого образца 4 мл. Калибровочные измерения проводились с солями калия ( $^{40}\text{K}$ ). Нижний предел общей активности для слоя весом 20 мг/см<sup>2</sup> составляет  $0,9 \cdot 10^{-12}$  кюри. На основе полученных значений предельных активностей по  $^{40}\text{K}$  предлагается использовать известные значения общей эффективности детекции для определения общей бета-активности смеси продуктов деления с возрастом минимально 150 дней. Для смеси продуктов деления предельная общая активность слоя образца весом 100 мг/см<sup>2</sup> составляет 1,3—1,4  $\cdot 10^{-12}$  кюри.

Перевела Т. Диллингерова

## POSSIBILITIES OF MEASUREMENT OF EXTREMELY LOW LEVEL $\beta$ ACTIVITIES BY THE GAS-FLOW GM-DETECTOR IN $2\pi$ GEOMETRY

M. Zaduban

Laboratory of Radiobiology, Department of Biology, Faculty of Natural Sciences,  
P. J. Šafárik University, Košice

A gas-flow GM-detector in  $2\pi$  geometry with absorption and anti-coincidence shielding was used for measuring of extremely low activities of solid and liquid  $\beta$ -emitters. At 2.22 c. p. m. background it is possible to take measurements of samples 50 mm im diameter. Maximum weight of the solid sample is 8 g, the volume should not exceed 4 ml. The calibrating was done by means of potassium salts ( $^{40}\text{K}$ ). The minimum limit of the total activity for absorber thickness 20 mg/cm<sup>2</sup> is  $0,9 \cdot 10^{-12}$  Ci. On the basis of the limit activity values achieved by  $^{40}\text{K}$  it is shown the possibility of utilizing the known value of the total detection efficiency even for determination of the total activity of decay products  $\beta$  mixture old 150 days at least. The limit total activity of 100 mg/cm<sup>2</sup> sample for decay products mixture is  $1,3-1,4 \cdot 10^{-12}$  Ci.

Translated by Z. Votický

## LITERATÚRA

1. Petržílka V., *Metody pro detekci a registraci jaderného záření*, 143. Nakladatelství ČSAV, Praha 1959.
2. Lippert J., *Low-Level Counting*. Risø Report No. 44, 1963.
3. Lerche P., Bercier P., *Bull. Soc. Vand. Sc. Nat.* **67**, [301], 223 (1960).
4. Nováková O., *Radioisotopy* (Bulletin ÚVVVR Praha) **7**, [2], 275 (1966).
5. Kautsky R., Schmitt D. E., *Atompraxis* **9**, [9], 1 (1963).
6. Schmidt H., *Kernenergie* **6**, 286 (1963).
7. Gebauer H., Müller S., *Atomwirtschaft* **10**, 486 (1962).
8. Zaduban M., *Radioisotopy* (Bulletin ÚVVVR Praha) **7**, [1], 33 (1966).
9. Bělousova I. M., Štukkenberg J. M., *Přirozená radioaktivita*, 36. Státní zdravotnické nakladatelství, Praha 1963.
10. Dželepov B. S., Peker L. K., *Decay Schemes of Radioactive Nuclei*. Izdatelstvo Akademii nauk SSSR, Moskva 1958.
11. Nováková O., Šilar J., *Jaderná energie* **6**, 365 (1960).
12. Spicyn V. J., *Metody práce s radioaktivními indikátory*, 100. Nakladatelství ČSAV. Praha 1957.



13. Feige Y., *Nature* **189**, [4759], 91 (1961).
14. Haberer K., *Atompraxis* **10**, [2], 1 (1964).
15. Haberer K., *Atomnaja technika za rubježom* **12**, 36 (1964).

Do redakcie došlo 21. 4. 1967

V revidovanej podobe 20. 11. 1967

*Adresa autora:*

*Ing. Milan Záduban, Rádiobiologické laboratórium Katedry biológie Prírodovedeckej fakulty UPJŠ, Košice, Kuzmányho 12.*