

2. J. Muhlendorff et al. Pros. Sympos. on isotope Separation. Amsterdam, 1957, p. 408.
3. P. Nettley et al. Ibidem, p. 385.
4. Н. Н. Севрюгова, О. В. Уваров, Н. М. Жаворонков. «Ж. физ. химии», 34, 1004 (1960).
5. А. В. Борисов, И. Г. Гвердцители. «Ж. физ. химии», 35, 1212 (1961).
6. Д. Р. Стелл. Таблицы давления паров индивидуальных веществ. М., Изд-во иностр. лит., 1949.
7. И. М. Лифшиц, Г. И. Степанова. В сб. «Проблемы кинетики и катализа. IX. Изотопы в катализе». М., Изд-во АН СССР, 1957, стр. 354.
8. А. М. Розен. Теория разделения изотопов в колоннах. М., Атомиздат, 1960, стр. 37.
9. Дж. Гиршфельдер, Г. Кертисс, Р. Берд. Молекулярная теория газов и жидкостей. М., Изд-во иностр. лит., 1961, стр. 854.
10. C. Raw. J. Chim. Phys., 34, 1452 (1961).
11. И. Б. Амирханова и др. «Докл. АН СССР», 149, 351 (1963).



УДК 543.52

## О методе определения концентраций короткоживущих дочерних продуктов радона в воздухе по $\alpha$ - и $\beta$ -излучениям

В. Г. Лабушкин, Л. С. Ружер

Предложен новый метод измерения концентраций RaA, RaB и RaC в воздухе, основанный на измерении  $\alpha$ - и  $\beta$ -активностей фильтра непосредственно после прокачки воздуха. Этот метод дает возможность получить более точные результаты, сократить время измерения и учесть эффект самопоглощения  $\alpha$ -излучения.

Известно, что основная опасность при вдыхании воздуха, содержащего радон и его дочерние продукты, обусловлена RaA, RaB, RaC и RaC': их вклад в дозу на несколько порядков больше вклада радона. Измерение концентраций этих изотопов в воздухе — одна из актуальных задач радиометрии аэрозолей.

Для определения концентраций RaA, RaB, RaC и RaC' обычно применяют методы измерения  $\alpha$ -активности осадка на фильтре [1, 2].

Эти методы используются для повседневного дозиметрического контроля содержания короткоживущих дочерних продуктов радона в атмосфере горнодобывающих предприятий. Для таких предприятий аппаратура контроля должна быть портативной, легкой, несложной в эксплуатации и работоспособной при значительных  $\gamma$ -полях. Для этой аппаратуры не требуется высокой точности.

В настоящей работе рассмотрен вопрос об измерении концентраций RaA, RaB и RaC в воздухе и предложен новый спектрометрический метод повышенной точности, основанный на одновременном измерении  $\alpha$ - и  $\beta$ -активностей каждого из дочерних продуктов, осаждаемых на фильтре. В том случае, когда

материнское вещество является долгоживущим, выражения для активностей RaA, RaB и RaC на фильтре к моменту окончания фильтрации  $A_A(\theta, 0)$ ,  $A_B(\theta, 0)$  и  $A_C(\theta, 0)$  могут быть получены из уравнения для цепочки радиоактивных превращений [3].

Каждый из дочерних продуктов будет осаждаться на фильтре с постоянной скоростью  $qv_i\delta \frac{\eta_i}{\lambda_i}$  (где  $v_i$  — скорость прокачки воздуха, л/мин;  $\delta$  — коэффициент улавливания;  $\eta_i$  — степень равновесности  $i$ -го дочернего продукта;  $\eta_i = \frac{q_i}{q}$ ,  $q_i$  — концентрация  $i$ -го изотопа в воздухе, кюри/л), что соответствует постоянной скорости распада долгоживущего материнского вещества. Активность RaC на фильтре  $A_C(\theta, t)$ , соответствующая времени фильтрации  $\theta$  и времени  $t$ , прошедшему от момента окончания фильтрации до момента измерения активности, складывается из активности RaC, осевшего при фильтрации, с учетом его распада  $A_C^0(\theta, t)$  и активностей RaC, образованного за счет распада RaA и RaB, накопившихся на фильтре за время фильтрации воздуха  $\theta$ ,  $A_C^A(\theta, t)$  и  $A_C^B(\theta, t)$  соответственно.

Активность RaB на фильтре  $A_B(\theta, t)$  в свою очередь складывается из активности RaB, осевшего при фильтрации воздуха,  $A_B^0(\theta, t)$  и активности RaB, получившегося за счет распада RaA, накопившегося на фильтре за время фильтрации воздуха  $\theta$ ,  $A_B^A(\theta, t)$ . При-



менив последовательно к RaA, RaB и RaC известные выражения для цепочки радиоактивных превращений [4], получим общие соотношения для активности каждого из продуктов распада радона, накопленных на фильтре.

Поскольку среди короткоживущих дочерних продуктов радона имеются  $\alpha$ ,  $\beta$ - и  $\gamma$ -излучатели и существует строгая зависимость между их активностями на фильтре, то концентрации RaA, RaB и RaC в воздухе в принципе можно определить, измерив активность осадка на фильтре по любому из указанных видов излучения. Существует несколько вариантов измерений: 1) измерение суммарной  $\alpha$ -активности фильтра в различные моменты времени  $t$  после окончания фильтрации; 2) измерение суммарной  $\beta$ - или  $\gamma$ -активности при различных  $t$ ; 3) измерение активности каждого из дочерних продуктов  $A_A(\theta, t)$ ,  $A_B(\theta, t)$ ,  $A_C(\theta, t)$  и  $A_C(\theta, t)$ . Погрешность измерения в каждом из этих вариантов зависит от отношения концентраций  $q_A : q_B : q_C$ , выбора моментов времени, в которые производится измерение активности, и других факторов.

При расчетах ошибок этих методов предположим, что активность осадка на фильтре измеряется с точностью  $\pm 10\%$ , что в основном соответствует точности используемых приборов. В табл. 1 приведены величины ошибок для указанных выше случаев при различных отношениях измеряемых концентраций RaA, RaB и RaC —  $q_A : q_B : q_C$ . Видно, что наиболее точным является раздельное измерение активности каждого из дочерних продуктов на фильтре.

Выбор момента времени, в который производится измерение активности, должен удовлет-

ворять условиям получения наименьших значений статистической и методической погрешностей. Как показало детальное рассмотрение, обоим этим условиям удовлетворяет  $t = 0$ . Таким образом, активность желательно измерять сразу после окончания фильтрации.

Следует заметить, что при определении концентраций RaA, RaB и RaC только по  $\alpha$ -активности необходимо учитывать самопоглощение  $\alpha$ -излучения, особенно в случаях, когда проба отбирается в местах с большой запыленностью воздуха. Измерение активности каждого из дочерних продуктов на фильтре позволяет ввести поправку  $P$  на самопоглощение  $\alpha$ -активности путем одновременного измерения  $\alpha$ -активности RaC' и  $\beta$ -активности RaC, находящихся между собой в равновесии.

На основании вышесказанного можно сделать вывод, что наиболее точным является метод раздельного измерения  $\alpha$ - и  $\beta$ -активностей каждого из дочерних продуктов радона на фильтре сразу после окончания фильтрации.

#### Определение концентраций RaA, RaB и RaC по $\alpha$ - и $\beta$ -активности

Известно, что короткоживущими  $\alpha$ -излучателями в радоновом ряду являются RaA и RaC' с энергиями 6,00 и 7,68 Мэв соответственно, короткоживущими  $\beta$ -излучателями — RaB и RaC с максимальными энергиями 0,65 и 3,17 Мэв соответственно. Вследствие существенного различия между энергиями этих излучателей можно относительно просто (с помощью сцинтилляционного спектрометра) измерить активность каждого из дочерних продуктов на фильтре.

Таблица 1

Сопоставление погрешностей (в %) различных методов измерений активности осадка продуктов распада радона на фильтре

$q_A : q_B : q_C$	Измерения суммарной $\alpha$ -активности фильтра через 5; 15 и 30 мин (методика Цивоглу)			Измерения суммарной $\alpha$ -активности фильтра через 1; 15 и 60 мин			Измерения суммарной $\beta$ -активности фильтра через 5; 15 и 30 мин			Измерения $\alpha$ - и $\beta$ -активности каждого из дочерних продуктов		
	$\frac{\Delta q_A}{q_A}$	$\frac{\Delta q_B}{q_B}$	$\frac{\Delta q_C}{q_C}$	$\frac{\Delta q_A}{q_A}$	$\frac{\Delta q_B}{q_B}$	$\frac{\Delta q_C}{q_C}$	$\frac{\Delta q_A}{q_A}$	$\frac{\Delta q_B}{q_B}$	$\frac{\Delta q_C}{q_C}$	$\frac{\Delta q_A}{q_A}$	$\frac{\Delta q_B}{q_B}$	$\frac{\Delta q_C}{q_C}$
1:1:1	300	53	75	120	23	37	6430	680	180	10	11	13
1:0,8:0,6	210	49	89	79	22	44	2980	690	195	10	11	13
1:0,5:0,5	160	57	80	58	27	40	4070	700	190	10	12	13
0,5:0,7:0,7	440	54	35	150	22	37	8810	680	180	10	11	12
1:0,1:0,01	35	57	460	19	56	200	690	900	420	10	22	49



Для определения  $q_A$ ,  $q_B$  и  $q_C$  в *кюри/л* необходимо проводить градуировку соответствующей аппаратуры по образцовым аэрозолям дочерних продуктов радона, что связано с большими трудностями.

На рис. 1 приведен спектр специально изготовленного неманирующего  $\alpha$ - и  $\beta$ -источника из  $Ra^{226}$ . Для снятия  $\alpha$ -спектров использовались сцинтилляционный спектрометр [кристалл CsJ(Tl) толщиной  $\sim 100$  мм] и полупроводниковый спектрометр. В первом случае разрешение составляло  $\sim 9\%$ , во втором  $\sim 1\%$ . Для снятия  $\beta$ -спектров использовался стильбен толщиной 13 мм. Как видно из рис. 1,

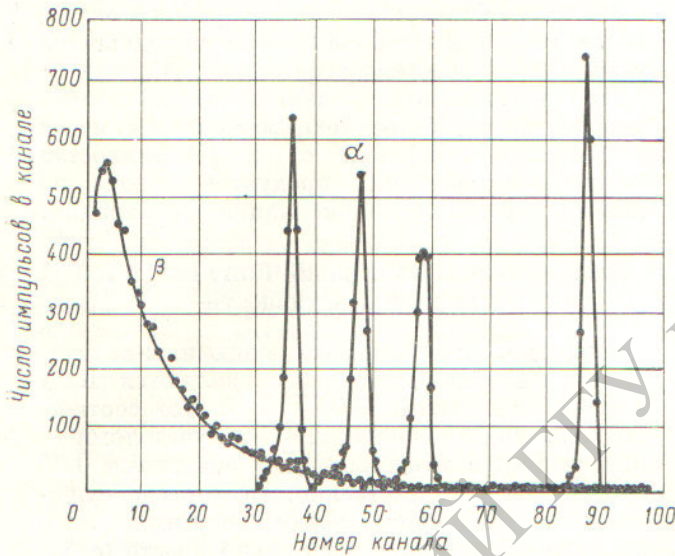


Рис. 1. Спектр  $\alpha$ - и  $\beta$ -излучений неманирующего источника  $Ra^{226}$ .

линии  $Ra$ ,  $Rn$ ,  $RaA$  и  $RaC'$  хорошо разрешаются на спектрограмме.

При измерении  $A_A$ ,  $A_C$ ,  $A_B$  и  $A_C$  методом  $\alpha$ - и  $\beta$ -спектрометрии число импульсов  $N_A(T_i, T_k)$  за счет  $RaA$  на фильтре и результат аналогичного измерения радиоактивного источника  $N_A^0(T_l, T_m)$  для  $\theta = 5$  мин связаны соотношением:

$$\frac{N_A(T_i, T_k)}{N_A^0(T_l, T_m)} A_A^0(T_m - T_l) = v_t \delta q_A 13,15 (e^{-\lambda_A T_i} - e^{-\lambda_A T_k}), \quad (1)$$

где  $T_i$  и  $T_k$ ,  $T_l$  и  $T_m$  — соответственно время начала и окончания измерения активности каждого изотопа на фильтре и в образцовом источнике. Для  $\alpha$ -излучения  $RaC'$  получим

$$\frac{N_C^0(T_i, T_k)}{N_C^0(T_l, T_m)} A_C^0(T_m - T_l) = v_t \delta \{q_A [0,31 (e^{-\lambda_A T_i} - e^{-\lambda_A T_k}) + 88,18 (e^{-\lambda_B T_i} - e^{-\lambda_B T_k}) - 66,50 (e^{-\lambda_C T_i} - e^{-\lambda_C T_k})] + q_B [685 (e^{-\lambda_B T_i} - e^{-\lambda_B T_k}) - 493 (e^{-\lambda_C T_i} - e^{-\lambda_C T_k})] + q_C \cdot 130,2 (e^{-\lambda_C T_i} - e^{-\lambda_C T_k})\}; \quad (2)$$

для  $\beta$ -излучения  $RaB$ :

$$\frac{N_B(T_p, T_q)}{N_B^0(T_l, T_m)} A_B^0(T_m - T_l) = v_t \delta \{q_A [23,3 (e^{-\lambda_B T_p} - e^{-\lambda_B T_q}) - 1,7 (e^{-\lambda_A T_p} - e^{-\lambda_A T_q})] + q_B \cdot 181 \times (e^{-\lambda_B T_p} - e^{-\lambda_B T_q})\}. \quad (3)$$

Формула для определения  $N_C(T_i, T_k)$  по  $\beta$ -излучению совпадает с соотношением (2).

Выбор интервала времени  $\Delta T = T_k - T_i$  определяется необходимостью получения заданной статистической точности при измерении активности  $RaA$ ,  $RaB$  и  $RaC$ .

### Методика измерений и экспериментальные результаты

Для экспериментального определения концентраций  $RaA$ ,  $RaB$  и  $RaC$  применялась установка, блок-схема которой показана на рис. 2.

Дочерние продукты радона осаждались путем прокачки заданного объема воздуха из камеры, в которой находился радон. Воздух прокачивался через фильтры типа НЭЛ или ЛФС (тонкий фильтр предназначен для  $\alpha$ -спектрометрии) при помощи ротационной воздуходувки со скоростью 20 л/мин. Измерения  $\alpha$ -активности фильтра производились при помощи упомянутой выше установки;  $\alpha$ - и  $\beta$ -активности фильтра измеряли одновременно с двух сторон.

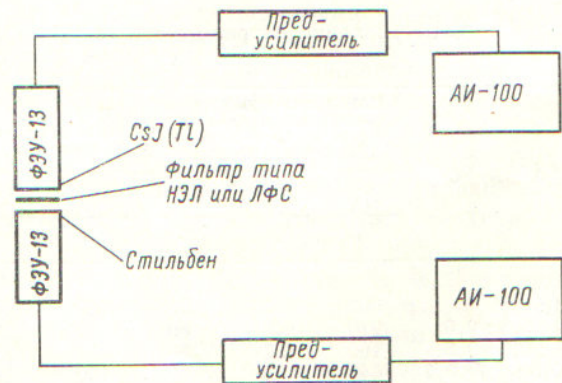


Рис. 2. Блок-схема экспериментальной установки.



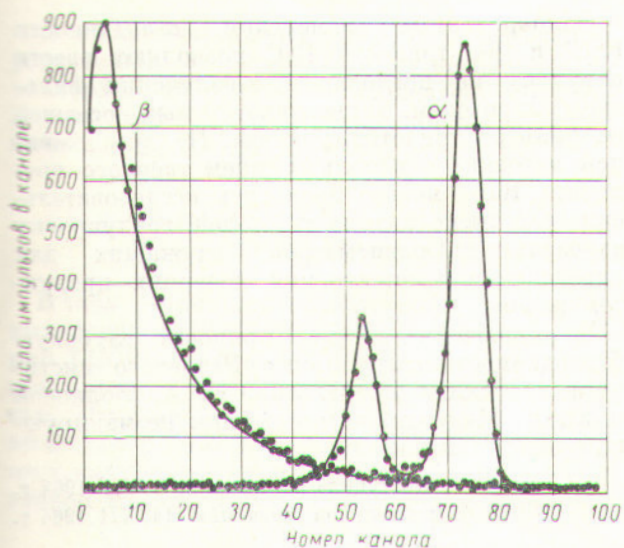


Рис. 3. Спектры α- и β-излучений активного осадка фильтра.

Для определения  $q_A$ ,  $q_B$  и  $q_C$  (в *кюри/л*) были проведены относительные измерения фильтра и радиевого неземанирующего источника. Для исключения влияния геометрического фактора площадь фильтра была равна площади радиевого источника. Полученные α- и β-спектрограммы фильтра приведены на рис. 3.

Число импульсов, зарегистрированных за время набора спектра  $\Delta T = T_k - T_i$ , равно площади соответствующих пиков. Определялись площади пиков, принадлежащих RaA и RaC'. Неземанирующий α-излучающий источник был изготовлен таким образом, чтобы Ra<sup>226</sup>, Rn<sup>222</sup>, RaA и RaC' находились в равновесии между собой.

Активность RaA на фильтре определяется путем сравнения числа импульсов от RaA фильтра и радиевого источника, а значение  $q_A$  в *кюри/л* находится по формуле (4).

Для определения  $q_B$  воспользуемся спектрограммами, приведенными на рис. 1 и 3. Используя моноэнергетический источник конверсионных электронов Cs<sup>137</sup> с энергией 0,624 Мэв, находим границу β-спектра RaB. Определив площади спектров RaB и RaC на фильтре и источнике и сравнив эти площади между собой, находим  $q_B$  и  $q_C$  по формулам (3) и (2). Концентрации RaA, RaB и RaC определены в *кюри/л*, так как учтены все условия, необходимые для проведения относительных измерений.

В табл. 2 приведены результаты измерений  $q_A$ ,  $q_B$  и  $q_C$  по методике Цивоглу и методике, основанной на измерении α- и β-активностей фильтра. Сравнение результатов по отношениям концентраций  $q_A : q_B : q_C$  (где  $q_A$  принято за единицу) дано для иллюстрации, так как определение величины  $q_A$  по методике Цивоглу приводит к большим ошибкам и нор-

Таблица 2

Сопоставление методов измерений концентрации продуктов распада радона в воздухе

Номер эксперимента	Метод измерений	$q_A : q_B : q_C$	Концентрация, <i>кюри/л</i>		
			$q_A$	$q_B$	$q_C$
1	А	1 : 0,36 : 0,22	—	—	—
	Б	1 : 0,30 : 0,23	$1,59 \cdot 10^{-10}$	$0,47 \cdot 10^{-10}$	$0,38 \cdot 10^{-10}$
2	А	1 : 0,97 : 0,85	—	—	—
	Б	1 : 0,84 : 1,17	$2,42 \cdot 10^{-10}$	$2,03 \cdot 10^{-10}$	$2,82 \cdot 10^{-10}$
3	А	1 : 0,67 : 0,40	—	—	—
	Б	1 : 0,40 : 0,67	$1,70 \cdot 10^{-10}$	$0,68 \cdot 10^{-10}$	$1,15 \cdot 10^{-10}$
4	А	1 : 1,22 : 0,89	—	—	—
	Б	1 : 0,85 : 1,56	$1,44 \cdot 10^{-10}$	$1,23 \cdot 10^{-10}$	$2,25 \cdot 10^{-10}$
5	А	1 : 1,68 : 1,35	—	—	—
	Б	1 : 1,25 : 1,57	$2,05 \cdot 10^{-9}$	$2,57 \cdot 10^{-9}$	$3,21 \cdot 10^{-9}$
6	А	1 : 0,47 : 0,47	—	—	—
	Б	1 : 0,30 : 0,55	$1,13 \cdot 10^{-9}$	$0,34 \cdot 10^{-9}$	$0,62 \cdot 10^{-9}$

\* А — измерение суммарной α-активности (методика Цивоглу); Б — измерение α- и β-активностей каждого изотопа.



мировка по нему дочерних продуктов вряд ли оправдана.

Сдвиги равновесия (см. табл. 2) в сторону последующих продуктов распада радона можно объяснить диффузионным осаждением RaA в подводных коммуникациях, которое имело место в наших экспериментах. В результате проведения дополнительных экспериментов было установлено, что в камере с радоном, из которой отбирались пробы, содержится около 30% «свободных атомов» RaA. При фильтрации воздуха значительная часть этих атомов оседает на внутренних стенках системы отбора пробы.

Из проведенной работы следует, что более точным методом определения концентраций RaA, RaB и RaC в воздухе является раздельное измерение активности каждого из дочерних продуктов радона на фильтре сразу после окончания фильтрации. Такие измерения могут быть проведены в течение 2—3 мин при времени фильтрации 5 мин, скорости прокачки 20 л/мин и концентрации дочерних продуктов радона  $\sim 0,1 \div 1$  ПДК. Следовательно, данный метод является более экспрессным, чем применявшийся ранее. Искомые концентрации  $q_A$ ,  $q_B$  и  $q_C$  определяются, непосредственно в кюри/л.

Одновременные измерения  $\alpha$ -активности RaC' и  $\beta$ -активности RaC позволяют ввести поправку на поглощение  $\alpha$ -излучения фильтром, аэрозолями и инертной пылью, осевшей на фильтре при отборе пробы. По предложенной методике с использованием твердого препарата Ra<sup>226</sup> можно проводить исследовательские работы по физике аэрозолей, градуировку аэрозольных радиометров, служащих для определения концентраций дочерних продуктов радона.

В заключение авторы приносят глубокую благодарность сотрудникам Радиового института АН СССР Д. М. Зив, Е. А. Волковой и Ю. В. Мазурек, изготовившим неманирующиеся источники из Ra<sup>226</sup>.

Поступила в Редакцию 3/VII 1964 г.  
В окончательной редакции 14/XII 1964 г.

#### ЛИТЕРАТУРА

1. E. Tsiougiou, H. Ayer, D. Holaday. *Nucleonics*, 11, No. 9, 40 (1953).
2. К. Марков, Н. Рябов, К. Стась. «Атомная энергия», 12, 315 (1962).
3. А. С. Рузер. Диссертация, МИФИ, 1961.
4. В. И. Гольданский, А. В. Куденко, М. И. Подгорецкий. Статистика отсчетов при регистрации ядерных частиц. М., Физматгиз, 1959.

УДК 551.577.7

## Радиоактивные выпадения на территории СССР в 1963 г.

С. Г. Малахов, Г. А. Серeda, В. Ф. Брендаков, Т. В. Полякова, Р. И. Первунина,  
В. И. Свищева, В. Н. Чуркин

В работе приведены сводные данные о радиоактивных выпадениях продуктов деления и их содержании в почве в СССР в 1963 г. На основании изучения изотопного состава радиоактивных выпадений делаются предположения об их принадлежности конкретным сериям испытаний. Дана оценка общего количества Sr<sup>90</sup>, выпавшего в северном полушарии в 1962 и 1963 гг.

Выпадения собирали на марлевые планшеты площадью 0,3 м<sup>2</sup>; экспозиция длилась 1 сутки. Эффективность сбора принималась равной 0,36 [1]. Радиохимическому и  $\gamma$ -спектрометрическому анализу подвергался пепел, полученный от сжигания планшетов, разставленных в 10—20 точках соответствующего административного района, области или республики. Обыч-

но пепел, собираемый с этих станций, накапливался в течение квартала, тщательно перемешивался и только после этого поступал на анализ. Определение Ce<sup>144</sup>, Ce<sup>141</sup>, Zr<sup>95</sup> в пробе проводилось методом  $\gamma$ -спектрометрии с применением 100-канального амплитудного анализатора и кристалла NaJ(Tl) диаметром 70 мм и высотой 50 мм. Выделение Sr<sup>90</sup> из пробы осуществлялось радиохимически по методу, описанному в работе [2]. Ошибка радиохимического анализа Sr<sup>90</sup> составляла не более 15%,  $\gamma$ -спектрометрического анализа Ce<sup>141</sup>, Ce<sup>144</sup>, Zr<sup>95</sup> — 10—15%. Количество Sr<sup>90</sup> в поверхностном слое почвы толщиной 10 см определялось согласно рекомендациям работы [3].