



УКРАЇНА

(19) **UA** (11) **106904** (13) **U**  
(51) МПК  
*C02F 1/62* (2006.01)  
*G01N 33/48* (2006.01)

ДЕРЖАВНА СЛУЖБА  
ІНТЕЛЕКТУАЛЬНОЇ  
ВЛАСНОСТІ  
УКРАЇНИ

**(12) ОПИС ДО ПАТЕНТУ НА КОРИСНУ МОДЕЛЬ**

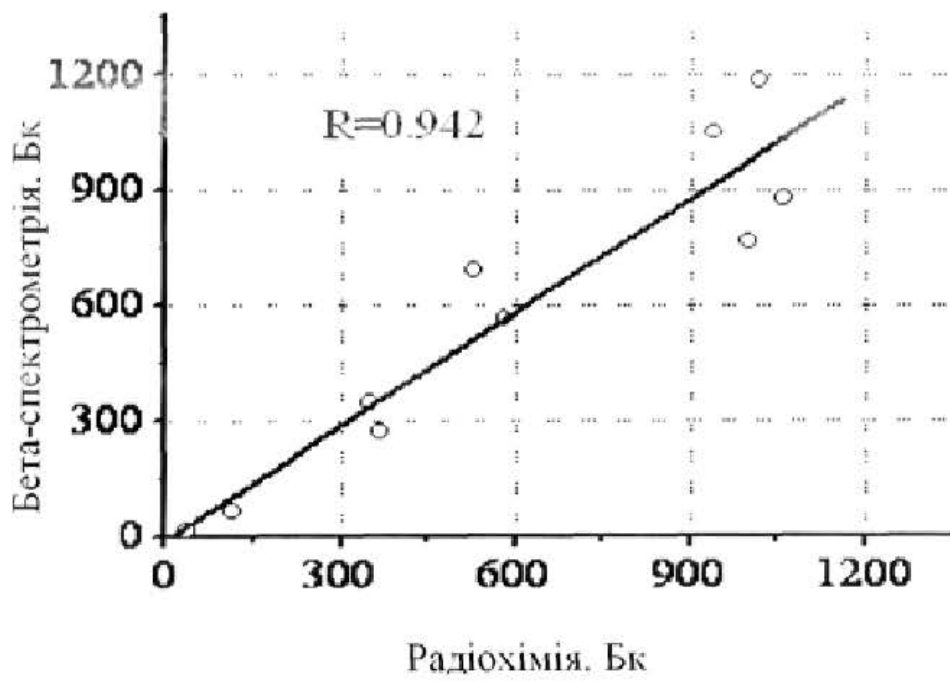
<p>(21) Номер заявки: <b>u 2015 11307</b></p> <p>(22) Дата подання заявки: <b>17.11.2015</b></p> <p>(24) Дата, з якої є чинними права на корисну модель: <b>10.05.2016</b></p> <p>(46) Публікація відомостей про видачу патенту: <b>10.05.2016, Бюл.№ 9</b></p>	<p>(72) Винахідник(и): <b>Желтоножська Марина Вікторівна (UA), Куліч Надія Владиславівна (UA), Липська Алла Іванівна (UA), Ніколаєв Володимир Іванович (UA)</b></p> <p>(73) Власник(и): <b>ІНСТИТУТ ЯДЕРНИХ ДОСЛІДЖЕНЬ НАЦІОНАЛЬНОЇ АКАДЕМІЇ НАУК УКРАЇНИ, пр. Науки, 47, м. Київ, 03680 (UA)</b></p>
---	---

**(54) СПОСІБ ОДНОЧАСНОГО ОПЕРАТИВНОГО ВИМІРЮВАННЯ  $^{90}\text{Sr}$  ТА  $^{137}\text{Cs}$  В БІОБ'ЄКТАХ МАЛОГО РОЗМІРУ БЕЗ ВИКОРИСТАННЯ РАДІОХІМІЇ**

**(57) Реферат:**

Спосіб одночасного оперативного вимірювання енергетичного спектра електронів  $^{90}\text{Sr}$  та  $^{137}\text{Cs}$  в біологічних об'єктах малого розміру методом спектрометрії, що полягає в порівнянні енергетичного спектра експериментального зразка з енергетичними спектрами калібрувальних зразків, причому для порівняння використовують калібрувальні зразки з відомими густиною та активністю  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{90}\text{Sr}$  та  $^{40}\text{K}$ , а при обробці результатів враховують поправку на зміну густини досліджуваного зразка через зсув піка резонансних конверсійних електронів  $^{137}\text{Cs}$ .

UA 106904 U



Фіг. 2.

Корисна модель, що заявляється, належить до галузей радіаційної біології, радіоекології та ядерної фізики. Задача корисної моделі полягає в створенні способу оперативного одночасного вимірювання енергетичного спектра електронів  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{90}\text{Sr}$  у біологічних об'єктах з підвищеною точністю, без радіохімії, враховуючи особливості спектрів  $^{137}\text{Cs}$  та  $^{90}\text{Sr}$ .

5      Поставлена задача вирішується способом одночасного вимірювання спектра електронів  $^{137}\text{Cs}$  та  $^{90}\text{Sr}$  в біологічних об'єктах малого розміру методом спектроскопії, який полягає в порівнянні енергетичного спектра експериментального зразка зі спектрами калібрувальних зразків. Згідно з корисною моделлю, для порівняння енергетичних спектрів використовують калібрувальні зразки з відомими значеннями густини та активності  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{90}\text{Sr}$  та  $^{40}\text{K}$ , а при  
10      обробці результатів вимірювання враховують поправку на невелику відмінність густини експериментального зразка та зсув піка резонансних конверсійних електронів  $^{137}\text{Cs}$  з енергією 630 кеВ від  $\gamma$ -переходу з  $E_\gamma=661$  кеВ.

Даний спосіб може бути використаний для одночасного вимірювання активності суміші радіонуклідів  $^{90}\text{Sr}$  та  $^{137}\text{Cs}$  в досліджуваних об'єктах.

15      Найбільш близьким до запропонованої корисної моделі є спосіб нерадіохімічного вимірювання  $^{90}\text{Sr}$ , що базується на відсіканні електронів цезію та стронцію тонкими пластинами з подальшим вимірюванням залишкового спектра електронів  $^{90}\text{Y}$ , який знаходиться в рівновазі з  $^{90}\text{Sr}$ . Порівнюючи результати вимірювання калібрувального і досліджуваного зразка просто отримати шукану активність  $^{90}\text{Sr}$ . Цей спосіб потребує проведення неодноразових вимірювань  
20      одного і того ж зразка з використанням пластин з різних матеріалів та товщини. Використання цього способу потребує тривалого часу, є трудомістким та не може бути застосовано для вимірювань живих об'єктів [1].

Єдиним оперативним способом вимірювання є метод  $\beta$ -спектрометрії  $^{90}\text{Sr}$  по дочірньому  $^{90}\text{Y}$ , проте він орієнтований на гомогенні зразки без домішок інших нуклідів (в незначних кількостях),  
25      наприклад,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{40}\text{K}$ . Прижиттєву оцінку вмісту  $^{90}\text{Sr}$  проводили у рідкісних випадках, причому не у всій тварині, а лише для невеликого ампутованого зразка (кінчик хвоста або палець миші), з використанням радіохімії або радіометрії [2]. Серед вітчизняних розробок аналогів корисної моделі, що заявляється, не знайдено.

Розроблений нами спосіб ґрунтується на спектроскопічних вимірах, і який успішно  
30      застосовується в широкому діапазоні співвідношень  $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs} \geq 0,01$  та в присутності природного  $^{40}\text{K}$ . При розпаді  $^{90}\text{Sr}$  випромінюються дві групи електронів з граничною енергією 0,55 і 2,3 МеВ, а при розпаді  $^{137}\text{Cs}$  - електрони з граничною енергією 0,51 МеВ, 1,2 МеВ, конверсійні електрони від гамма-квантів 661 кеВ  $^{137}\text{Cs}$  з енергією 630 кеВ, та електрони, що виникають при розпаді  $^{40}\text{K}$  з граничною енергією 1,3 МеВ. Головною проблемою при вимірюванні  $^{90}\text{Sr}$  є те, що електрони мають суцільний спектр і їх пробіг у зразку залежить від його щільності. Відомо, що чим товстіший шар реєстрації електронів в  $\beta$ -детекторі, тим вища його ефективність, а з нею і оперативність оцінки  $^{90}\text{Sr}$ . Натомість, присутність в зразку активності  $^{137}\text{Cs}$  на порядок більшої,  
35      ніж такої ж  $^{90}\text{Sr}$  і підвищеного зовнішнього радіаційного фону збільшує ймовірність реєстрації  $\gamma$ -квантів ( $E_\gamma=661$  кеВ), комптонівських  $\gamma$ -квантів і, особливо, рентгенівського випромінювання  $\text{K}_\alpha$   $^{137}\text{Ba}$ , що ускладнює аналіз Р-спектра. Крім великої домішки  $^{137}\text{Cs}$ , у зразках, відібраних в зонах з щільністю забруднення території  $\leq 1$  Ки/км<sup>2</sup>, значний внесок у повний  $\beta$ -спектр починають вносити електрони  $^{40}\text{K}$  ( $E_{\text{рп}}=1,3$  МеВ).  
40     

Обробка експериментальних спектрів проводилась способом їх порівняння зі спектрами калібрувальних зразків. Калібрувальні зразки мають відому густину та активність  $^{90}\text{Sr}$ , або  $^{137}\text{Cs}$ ,  
45      або  $^{40}\text{K}$ . Подальша обробка експериментального спектра проводилась методом порівняння його з калібрувальними спектрами, які отримані на цьому ж спектрометрі. Після врахування фону, виміряного також з високою точністю, спектри калібрувальних джерел описуються кубічними сплайнами і (в подальшому) використовуються для опису експериментальних спектрів. Для реалізації способу одночасного вимірювання  $^{90}\text{Sr}$  та  $^{137}\text{Cs}$  використовували спектрометр СЕБ-50 з пластиком сцинтиляційним детектором товщиною 1 мм, діаметром 76 мм та відповідним програмним забезпеченням.  
50     

На Фіг. 1 представлені  $\beta$ -спектри досліджуваного та калібрувальних зразків.

Обробка результатів вимірів відбувається наступним чином: у загальному випадку при апроксимації експериментальних даних  $\{y_i\}, 1 \leq i \leq i_0$  за допомогою функції  $f(i, X)$ , де  $X$  -  
55      вектор підгінних параметрів  $\{X_j\}, 1 \leq j \leq j_0$  ( $j_0$  - кількість підгінних параметрів), необхідно методом найменших квадратів мінімізувати функціонал  $(S(X))$ .

$$S(X) = \sum_{i=1}^{i_0} w_i [f(i, X) - y_i]^2,$$

де  $w_i$  - ваговий коефіцієнт, який рівний оберненому квадрату експериментальної похибки.

Для визначення мінімуму функціоналу похідні  $\partial S / \partial X_j$  прирівнюються нулю, і отримана система рівнянь вирішується відносно шуканих параметрів  $X_j$ . Отриманому рішенню  $X_0$  відповідає мінімальне значення функціоналу  $S(X) = S_0$ . Для визначення похибок параметрів для кожного з них по черзі знаходиться рішення рівняння  $S(X_{0j} + \delta X_j, X_j) = S_0 + 1$  щодо  $\delta X_j$ , тобто визначається, при якому відхиленні  $j$ -го параметра від оптимальної величини (при фіксованих інших параметрах) значення функціоналу  $S$  збільшується на 1 порівняно з мінімальним. При цьому похибка параметрів буде дорівнювати:

$$\Delta X_j = \delta X_j \cdot R,$$

де  $R$  - параметр, що враховує якість підгонки, так зване " $\chi^2$  на ступінь свободи".

Насамперед із спектра, що обробляється, та спектрів калібрувальних джерел, кожен з яких складається з  $i_0$  каналів з числом відліків  $N_i$  в  $i$ -му каналі,  $1 \leq i \leq i_0$ , виміряних протягом реального часу  $t_j$ , віднімається спектр фону (з урахуванням реального часу вимірювань), індекс  $j$  відповідає: 0 - оброблюваному спектру, 1 - калібрувальному спектру  $^{137}\text{Cs}$ , 2 - калібрувальному спектру  $^{90}\text{Sr}$ , 3- $^{40}\text{K}$ :

$$y_{j,i} = N_{j,i} - t_j / t_{\text{фон}} \cdot N_{\text{фон},i},$$

де  $1 \leq i \leq i_0, 0 \leq j \leq 3$ .

В результаті віднімання виходять "чисті" калібрувальні спектри  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{90}\text{Sr}$  та спектр зразка, що аналізується. Останній містить невідомі активності  $^{137}\text{Cs}$ ;  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{40}\text{K}$ , а також невеликі домішки інших нуклідів, наприклад  $\gamma$ -нукліди з рядів торію та урану.

Для врахування цих домішок додається квадратичний фон

$$a = \sum_{k=0}^2 a_k i^k.$$

Ще одна поправка вноситься у зв'язку з тим, що при досить тривалій роботі устаткування, підсилення спектрометра може змінюватися, а з ним і калібрівка по енергії в спектрах проб та калібрувальних спектрах тобто  $i$ -му каналу в калібрувальному спектрі буде відповідати енергія  $E_0$ , а в оброблюваному спектрі -  $(1+c)E_0$ , де  $c$  - мала поправка. Для врахування цього ефекту калібрувальні спектри модифікуються таким чином. У відповідність  $i$ -му каналу оброблюваного спектра ставиться  $i$ -й канал калібрувальних спектрів,  $\hat{i} = (1+c)i$ . В загальному випадку  $\hat{i}$  не є цілим. Тому число відліків калібрувального спектра в  $\hat{i}$ -му каналі визначається методом лінійної інтерполяції:

$$y_i \approx y_{i_0} + (y_{i_0+1} - y_{i_0}) \cdot (\hat{i} - i_0),$$

де  $\hat{i}_0$  - ціла частина від  $\hat{i}$ . При виділенні в оброблюваному спектрі області каналів від  $i_1$  до  $i_2$  функціонал набуває вигляду:

$$S(a, b, c) = \sum_{i=i_1}^{i_2} w_i \left[ \sum_{j=1}^3 b_j \cdot (y_{j,i} + (y_{j,i+1} - y_{j,i}) \cdot c \cdot i) + \sum_{k=0}^2 a_k i^k - y_i \right]^2. \quad (1)$$

У результаті його мінімізації визначаються параметри  $b_j$  - відносні активності  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{40}\text{K}$ . Для отримання абсолютної активності  $A$  потрібно помножити їх на активність калібрувальних зразків і врахувати співвідношення реального часу вимірів:

$$A_j = b_j \cdot \beta_j \cdot t_0 / t_j,$$

де  $\beta_j$  - активність відповідного калібрувального зразка;  $t_0$  - час вимірювання калібрувального зразка;  $t_j$  - час вимірювання експериментального зразка.

В радіобіологічних дослідженнях даний спосіб задовільно працює для тварин дрібних розмірів (з масою тіла до 40-50 г), хоча невизначеність, пов'язана з топографією скелета, розмірами тіла та умовами, в яких проводяться вимірювання, залишається. Тому, працюючи з черговою принципово новою по анатомії групою організмів, слід проводити порівняння

5 результатів  $\beta$ -спектрометрії  $^{90}\text{Sr}$  з результатами радіохімії.

Що стосується вимірювань неживих об'єктів (ґрунт, рослинність), з попередньою ретельною гомогенізацією, то  $\beta$ -спектрометрія  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{40}\text{K}$  можлива незалежно від розміру зразка. Але тут також існує завдання коректного обліку самопоглинання  $\beta$ -електронів залежно від маси та густими зразка. Нами для оцінки самопоглинання в неживих об'єктах розроблено спосіб, що

10 заснований на зсуві піку конверсійних електронів з енергією 630 кеВ. Залежно від втрат на іонізацію відбувається зміщення цього піку [3]. Зсув описується формулою:

$$d / \rho = 0,5E - 0,1,$$

де  $d$  - пробіг електронів в  $\text{г}/\text{см}^2$ ,  $\rho$  - густина в  $\text{г}/\text{см}^3$ ,  $E$  - енергія електронів в МеВ.

Вимірявши енергію цих електронів в калібрувальному зразку цезію та порівнявши її зі значенням у досліджуваному зразку, визначають поправку на самопоглинання. Природно, що ця поправка буде різною для різних типів детекторів і матеріалу калібрувального зразка. Тому бажано, щоб густина  $\rho$  калібрувального зразка і досліджуваних зразків не суттєво відрізнялась, тобто для зразків рослин і тварин необхідно використовувати калібрувальний зразок з густиною, близькою до 1, а для проб ґрунту - близькою до густини досліджуваного типу ґрунту. Проведені

20 дослідження показали, що поправка на самопоглинання ( $\Delta A$ , %) визначається формулою:

$$\Delta A = 0,16(E_{\phi} - E)A,$$

де  $A$  - активність  $^{137}\text{Cs}$ ;  $E_{\phi}$  - енергія конверсійного піка в калібрувальному зразку кеВ;  $E$  - енергія конверсійного піка в реальному спектрі кеВ.

З врахуванням самопоглинання отримуємо уточнене значення активності  $^{137}\text{Cs}$ .

25 На Фіг. 2 наведено порівняння результатів вимірювання  $^{90}\text{Sr}$  радіохімічним та пропонованим спектрометричним (без радіохімічного виділення) способом. видно, спостерігається гарне узгодження отриманих результатів. Порівняння результатів вимірювань  $^{90}\text{Sr}$  у дрібних мишоподібних гризунів вагою тіла від 14 до 45 г з питомою активністю  $^{137}\text{Cs}$  від 1 до 400 Бк/г показало повний збіг в межах 15-20 % з даними отриманими з використанням радіохімічного

30 аналізу. Це суттєве зменшення похибок відбулося, в основному, за рахунок врахування активності  $^{40}\text{K}$ . Без врахування активності цього ізотопу розбіжність збільшувалася в середньому до 30 %, а для зразків ґрунту, де активності  $^{90}\text{Sr}$  і  $^{40}\text{K}$  були співрозмірні - до 100 %. Порівняння результатів вимірювань  $^{90}\text{Sr}$  у зразках ґрунту показало повний збіг в межах 10-15 % при зміні активності в зразках на чотири порядки.

35 Перелік фігур

Фіг. 1.  $\beta$ -спектр ґрунту та калібрувальних зразків.

Фіг. 2. Порівняння результатів визначення активності  $^{90}\text{Sr}$  у мишоподібних гризунів ( $n=10$ ), отриманих способом бета-спектрометрії та радіохімії, Бк на зразок.

Джерела інформації:

40 1. Герфорт, Л. Практикум по радиоактивности и радиохимии / Л. Герфорт, Х. Кох, К. Хюбнер // перевод с немецкого канд. хим. наук К.Б. Забороненко. - М: Мир, 1984. С. 89-92.

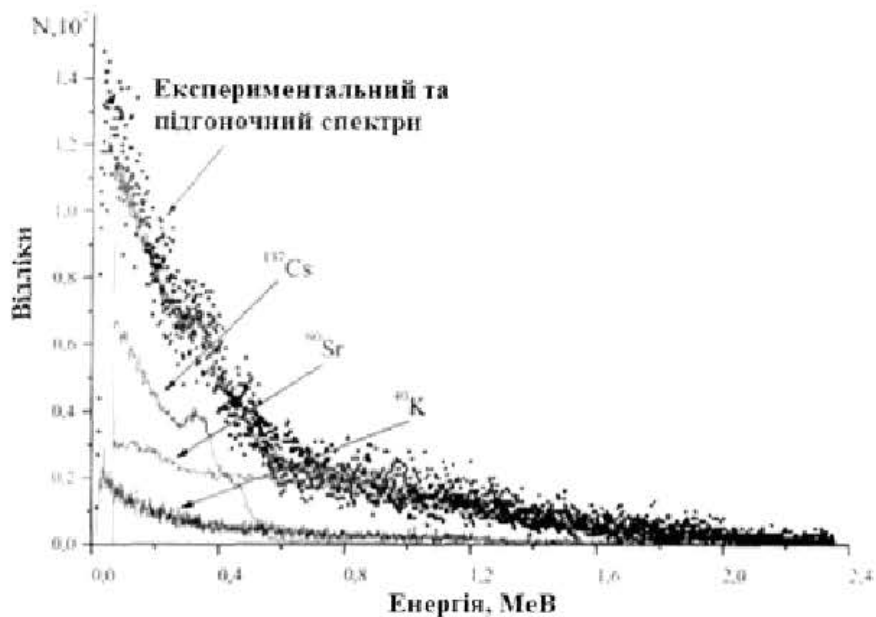
2. Маклюк Ю.О. Особливості накопичення Sr, Cs і дозові навантаження у мишоподібних та мідицеподібних Зони відчуження і Зони безумовного (обов'язкового) відселення: Автореф. дис. к.б.н.:03.00.01. - К, 2008. - 21 с.

45 3. Зигбан, К. Альфа-, бета- и гамма-спектроскопия / К. Зигбан // Под ред... К. Зигбана. - М.: Атомиздат, 1969. - Вып. 3. - С. 674.

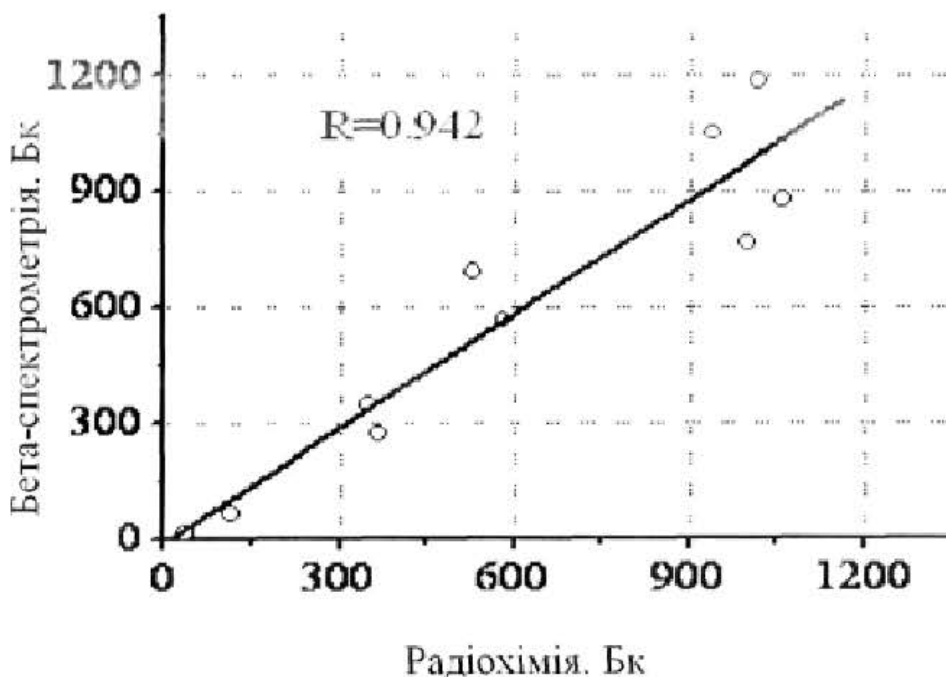
#### ФОРМУЛА КОРИСНОЇ МОДЕЛІ

50 1. Спосіб одночасного оперативного вимірювання енергетичного спектра електронів  $^{90}\text{Sr}$  та  $^{137}\text{Cs}$  в біологічних об'єктах малого розміру методом спектрометрії, що полягає в порівнянні енергетичного спектра експериментального зразка з енергетичними спектрами калібрувальних зразків, який **відрізняється** тим, що для порівняння використовують калібрувальні зразки з відомими густиною та активністю  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{90}\text{Sr}$  та  $^{40}\text{K}$ , а при обробці результатів враховують поправку на зміну густини досліджуваного зразка через зсув піка резонансних конверсійних електронів  $^{137}\text{Cs}$ .

2. Спосіб за п. 1, який **відрізняється** тим, що при обробці результатів враховується пік резонансних конверсійних електронів  $^{137}\text{Cs}$  енергією 630 кеВ від гамма-переходу з енергією 661 кеВ.



Фіг. 1.



Фіг. 2.

Комп'ютерна верстка О. Рябо

Державна служба інтелектуальної власності України, вул. Василя Липківського, 45, м. Київ, МСП, 03680, Україна

ДП "Український інститут інтелектуальної власності", вул. Глазунова, 1, м. Київ – 42, 01601