

## КОНСТРУКЦИОННЫЕ И ФУНКЦИОНАЛЬНЫЕ МАТЕРИАЛЫ

УДК 539.1.08 + 539.166.3

### ОСОБЕННОСТИ РАДИОМЕТРИЧЕСКОГО ИЗМЕРЕНИЯ АКТИВНОСТИ РАДИОИЗОТОПА АЛЮМИНИЯ-26

© 2022 г. А. Г. Волкович<sup>1</sup>, О. П. Иванов<sup>1</sup>, В. В. Лукьянов<sup>1</sup>,  
В. Н. Потапов<sup>1</sup>, И. А. Степалин<sup>1,\*</sup>

<sup>1</sup> Национальный исследовательский центр “Курчатовский институт”, Москва, Россия

\*E-mail: Stepalin\_IA@nrcki.ru

Поступила в редакцию 10.12.2021 г.

После доработки 19.01.2022 г.

Принята к публикации 19.01.2022 г.

Определена активность долгоживущего изотопа алюминия-26 методом радиометрического анализа с использованием программного комплекса MCNP4, реализующего метод Монте-Карло. Образец изотопа алюминия-26 являлся низкоактивным и измерения проводились тремя различными способами, учитывающими особенности радиоактивного распада, в частности влияние каскадных и аннигиляционных квантов на аппаратные спектры при радиометрических измерениях.

DOI: 10.56304/S2782375X22010211

#### ВВЕДЕНИЕ

Алюминий-26 является самым долгоживущим из открытых на сегодня нестабильных изотопов алюминия и относится к группе исчезнувших (космогенных) радионуклидов [1]. Период полураспада этого изотопа составляет  $7.17 \times 10^5$  лет [2, 3]. Данные радионуклиды образовывались в период формирования Солнечной системы около 4.56 млрд. лет назад, но в силу своего относительно малого периода полураспада уже не регистрируются в естественных условиях [4, 5]. Однако они могут накапливаться в недрах звезд [6–9] и в ограниченных количествах на Земле [6] и ряде малых небесных тел [10–13] в результате взаимодействия ядер с космическим излучением [14], а также реакции заряженных частиц и нейтронной активации при работе ядерно-технических установок [15, 16]. Изотоп  $Al^{26}$  может быть получен искусственно в результате следующих реакций:

– облучение стабильного  $Al^{26}$  быстрыми нейтронами:  $Al^{27}(n,2n)Al^{26}$   $Al^{27}_{13} + n^0 \rightarrow Al^{26}_{13} + 2n^0$  [15];

– облучение алюминия протонами посредством одноступенчатой реакции:  $Al^{27}(p,pn)Al^{26}$  и двуступенчатой с образованием  $Si^{26}$ , претерпевающего бета-плюс распад:  $Al^{27}(p,2n)Si^{26} \xrightarrow{\beta^+} Al^{26}$  [10, 16];

– облучение изотопов магния дейтерием:  $Mg^{26}(d,n)Al^{26}$ ,  $Mg^{26}(d,2n)Al^{26}$  [16];

– взаимодействие магния с тритием:  $Mg^{24}(t,n)Al^{26}$  [17].

Данный изотоп используется при датировке времени рождения малых небесных тел, таких как астероиды и кометы [12, 14]. При отделении от более массивных планет они подвергаются интенсивному облучению космическими лучами, в результате которого некоторая часть кремния в их составе трансмутирует в  $Al^{26}$  [12]. На этом принципе основан метод радиоизотопного датирования  $Al^{26}$ – $Mg^{26}$  [14].

Изотоп  $Al^{26}$  распадается посредством конкурирующих между собой процессов позитронного распада и захвата электрона [2, 3]. При позитронном распаде образуется позитрон  $e^+$ , электронное нейтрино  $\nu_e$  и ядро  $Mg^{26}_{12}$ . Дочернее ядро  $Mg^{26}$  переходит в основное состояние, излучая гамма-квант по одному из трех возможных каналов с испусканием пары квантов 1129.7 и 1808.7 кэВ (2.74%), одного кванта 1808.7 кэВ (97.24%) или одного 2938.4 кэВ (0.24%) (рис. 1). Образовавшийся при распаде позитрон термализуется и аннигилирует с одним из электронов. В результате образуется пара гамма-квантов с равными энергиями 511 кэВ и разнонаправленными импульсами. В случае электронного захвата ядро забирает электрон с внутренней оболочки, превращаясь в  $Mg^{26}$ . Аналогично случаю позитронного распада это ядро переходит в основное состояние посред-

ством испускания характеристических гамма-квантов или оже-электронов.

### ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНО-МЕТОДИЧЕСКАЯ ЧАСТЬ

Естественно предположить, что при спектрометрических исследованиях низкоактивных изотопов, в данном случае  $Al^{26}$ , целесообразно помещать исследуемый образец в непосредственной близости к детектору, повышая тем самым эффективность регистрации излучения. Однако в этом случае возникают эффекты, искажающие измеряемые аппаратные спектры, что необходимо учитывать в таких ситуациях. На малых расстояниях между детектором и источником начинает проявляться эффект суммирования каскадных и аннигиляционных квантов. Ввиду малости временного промежутка между образованием позитрона с его последующей аннигиляцией и испусканием гамма-квантов возбужденным дочерним ядром может произойти одновременная регистрация этих квантов в детекторе. Кроме того, такое наложение может произойти с каскадными гамма-квантами с энергиями 1129.7 и 1808.7 кэВ (рис. 1).

Чтобы исключить эффекты суммирования каскадных и аннигиляционных квантов, увеличивают расстояние между детектором и источником. В этом случае существенно уменьшается вероятность одновременной регистрации каскадных и аннигиляционных квантов. Такой подход можно применять для образца с достаточно высокой активностью. Поскольку в случае исследуемого образца наблюдается обратная ситуация, приходится искать нестандартные подходы измерения активности. В настоящей работе описаны три способа измерения, при реализации которых применяют измерения с другими радионуклидами, в частности источники с радионуклидом  $Na^{22}$ .

Типичный спектр источника алюминия-26, расположенного вплотную к сцинтилляционному детектору, представлен на рис. 2. Данный спектр отображает все характерные особенности его формирования, когда проявляются упомянутые выше эффекты, в частности суммирования квантов.

Образцом с радионуклидом алюминий-26, используемым для измерения активности, являлся жидкий раствор, находящийся в стеклянной ампуле. Поэтому форма образца представляла собой цилиндр диаметром  $10 \times 5$  мм<sup>2</sup>.

Для измерения спектров использовали следующее оборудование:

– универсальный мобильный спектрометрический комплекс “Колибри” (СКС-08П) [18];

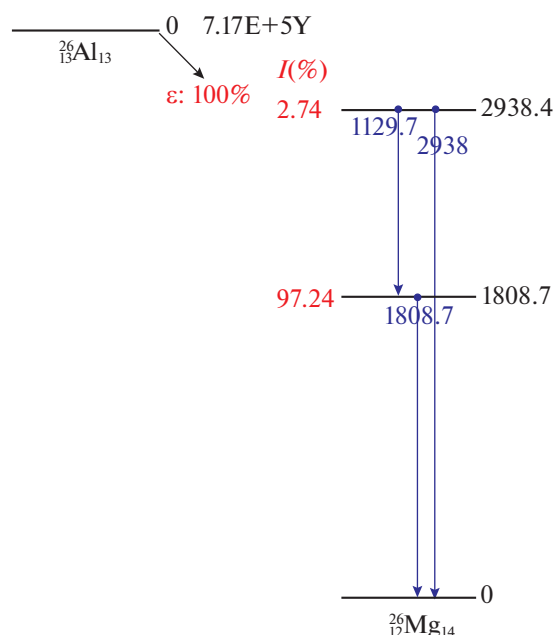


Рис. 1. Схема распада алюминия-26.

– блок детектирования БДЭГ-50(50)Н ( $50 \times 50$ ) мм<sup>2</sup> [19];

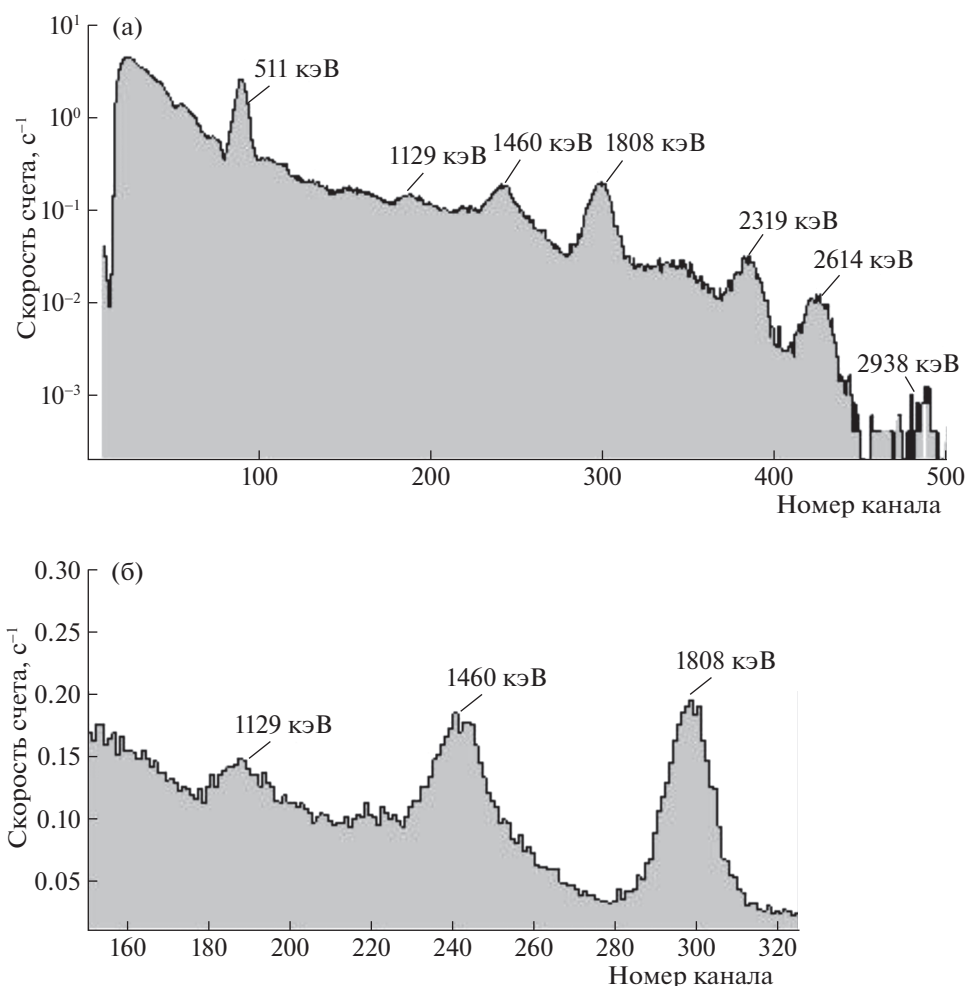
– ноутбук с программным обеспечением.

Традиционным методом определения активности исследуемого образца является нахождение калибровочного коэффициента с помощью эталонного источника известной активности, содержащего аналогичный изотоп. По причине крайней редкости изотопа  $Al^{26}$  и отсутствия эталонных источников для этого изотопа был выбран альтернативный подход с использованием образцового спектрометрического гамма-источника (ОСГИ)  $Na^{22}$ . Данный изотоп использовался вследствие идентичности механизмов распада и даже совпадения одной из энергетических линий.

Была проведена серия измерений с исследуемым образцом и ОСГИ на расстоянии 0.5, 11.7, 25 см, результаты приведены в табл. 1. Скорость счета в пике полного поглощения (ППП) алюминия-26 на расстоянии 25 см от детектора получить не удалось ввиду малой активности источника.

Для определения активности образца были применены три подхода с использованием скорости счета для энергетической линии 511 кэВ.

В первом способе определения активности образца использовали данные скоростей счета по линии 511 кэВ обоих источников, расположенных на расстоянии 25 см. На таком расстоянии эффекты каскадного и аннигиляционного суммирования не проявляются (данные эффекты носят чисто геометрический характер). Также оба источника можно считать точечными.



**Рис. 2.** Экспериментальный спектр алюминия-26, полученный с помощью детектора NaI 50 × 50 мм: полный спектр (а), область пика полного поглощения 1129 кэВ (б). Хорошо различимы ППП: 1129, 1808 кэВ, а пик 2938 кэВ также совпадает с пиком каскадного суммирования. Кроме того, проявляются пики от аннигиляции электрон-позитронной пары (511 кэВ), калия-40 (1460 кэВ) и таллия-208 (2614 кэВ).

Калибровочный коэффициент для источника  $\text{Na}^{22}$  на расстоянии 25 см определяется через скорость счета в ППП по линии 511 кэВ в пересчете на единичную активность источника. Используемый ОСГИ  $\text{Na}^{22}$  на момент измерения имел активность  $A^{\text{Na}} = 24.4$  кБк, поэтому  $C_{\text{calibr}}^{\text{Na}}(25) = n^{\text{Na}}(25)/A^{\text{Na}} = 2.16 \times 10^{-3} \text{ с}^{-1}$ .

Для того чтобы перейти к калибровочному коэффициенту для  $\text{Al}^{26}$ , необходимо пересчитать  $C_{\text{calibr}}^{\text{Na}}(25)$  с учетом разных выходов позитрона при распаде  $\text{Na}^{22}$  и  $\text{Al}^{26}$ :

$$C_{\text{calibr}}^{\text{Al}}(25) = C_{\text{calibr}}^{\text{Na}}(25) \cdot \frac{v^{\text{Al}}}{v^{\text{Na}}} = 2.16 \times 10^{-3} \frac{163.5}{179.9} = 1.95 \times 10^{-3} \text{ с}^{-1}.$$

Здесь  $C_{\text{calibr}}^{\text{Al}}(25)$  – калибровочный коэффициент на расстоянии 25 см для  $\text{Al}^{26}$ ,  $v^{\text{Al}}, v^{\text{Na}}$  – выход позитрона при  $\beta^+$ -распаде  $\text{Al}^{26}$  и  $\text{Na}^{22}$  соответственно.

Ввиду отсутствия экспериментального значения скорости счета  $n^{\text{Al}}(25)$ , придется оценить ее

**Таблица 1.** Значения скоростей счета в ППП  $\text{Na}^{22}$  и  $\text{Al}^{26}$ , полученные в различных геометриях

Расстояние детектор–источник	Na-22, 511 кэВ	Al-26, 511 кэВ
0.7 см	2813 $\text{с}^{-1}$	17.2 $\text{с}^{-1}$
11.7 см	273 $\text{с}^{-1}$	1.5 $\text{с}^{-1}$
25 см	52.7 $\text{с}^{-1}$	

через  $n^{Al}(11.7)$ , учитывая, что скорость счета для точечного источника убывает обратно пропорционально квадрату расстояния

$$n^{Al}(25) = n^{Al}(11.7) * \left(\frac{11.7}{25}\right)^2 = 0.32 \text{ с}^{-1},$$

где  $n^{Al}(25)$ ,  $n^{Al}(11.7)$  – скорости счета в пике 511 кэВ  $Al^{26}$  на расстоянии 25 и 11.7 см соответственно.

Тогда активность образца  $Al^{26}$  будет равна

$$A_{Al} = \frac{n^{Al}(25)}{C_{calibr}^{Al}(25)} = 167.6 \text{ Бк.}$$

С учетом неопределенности измерения значение активности можно представить в виде

$$A_{Al} = 168 \pm 5 \text{ Бк.} \quad (1)$$

Второй способ отличался от первого тем, что использовали скорости счета в ППП на расстоянии между детектором и источником 11.7 см.

Калибровочный коэффициент  $Na^{22}$  для 11.7 см равняется скорости счета в ППП 511 кэВ:

$$C_{calibr}^{Na}(11.7) = n^{Na}(11.7)/A^{Na} = 1.12 \times 10^{-2} \text{ с}^{-1},$$

где  $C_{calibr}^{Na}(11.7)$  – калибровочный коэффициент для  $Na^{22}$  на расстоянии 11.7 см от детектора.

С учетом разных выходов позитрона калибровочный коэффициент для  $Al^{26}$  получился равным

$$C_{calibr}^{Al}(11.7) = C_{calibr}^{Na}(11.7) * \frac{v^{Al}}{v^{Na}} = 1.02 \times 10^{-2} \text{ с}^{-1}.$$

В этом варианте активность образца получается равной

$$A_{Al} = \frac{n^{Al}(11.7)}{C_{calibr}^{Al}(11.7)} = 147.6 \text{ Бк,}$$

а с учетом неопределенности измерения окончательный результат имеет вид

$$A_{Al} = 148 \pm 5 \text{ Бк.} \quad (2)$$

Третий способ нахождения активности образца заключался в использовании ППП также по линии 511 кэВ при расположении источника вплотную к детектору, т.е. на расстоянии 0.7 см.

Скорость счета  $Na^{22}$  на расстоянии 0.7 см от детектора в пересчете на один испущенный квант равна калибровочному коэффициенту для данной геометрии:

$$C_{calibr}^{Na}(0.7) = n^{Na}(0.7)/A^{Na} = 0.115 \text{ с}^{-1}.$$

Калибровочный коэффициент для  $Al^{26}$  с учетом разных выходов позитронов

$$C_{calibr}^{Al}(0.7) = C_{calibr}^{Na}(0.7) * \frac{v^{Al}}{v^{Na}} = 0.1045 \text{ с}^{-1},$$

тогда активность образца без учета эффектов наложения квантов будет равна

$$A_{Al} = \frac{n^{Al}(0.7)}{C_{calibr}^{Al}(0.7)} = 164.6 \text{ Бк.}$$

Чтобы учесть влияние эффекта суммирования каскадных и аннигиляционных квантов, можно поступить следующим образом. Допустим, имеется спектр от точечного источника  $Na^{22}$  единичной активности. Тогда скорость счета в пике 511 кэВ будет равна вероятности гамма-кванта быть зарегистрированным в соответствующем канале. Обозначим эту вероятность  $P_1$ . Интеграл по всему спектру без учета пика 511 кэВ даст вероятность  $P_2$  регистрации всех фотонов, кроме тех, что появились в результате аннигиляции электрон-позитронной пары. Два этих события независимы друг от друга. Следовательно, чтобы получить вероятность  $\tilde{P}$  одновременной регистрации квантов от распада натрия и аннигиляции позитрона (в результате чего и происходит их наложение), нужно перемножить вероятности:  $\tilde{P} = P_1 * P_2$ . Тогда очевидно, что величина  $1 - \tilde{P}$  будет вероятностью избежать наложения.

Для оценки этих вероятностей провели моделирование с использованием программы MCNP4, по результатам получили два спектра: от источника без линии 511 кэВ и спектр  $Al^{26}$  только с этой линией. Интегральная характеристика по этим спектрам определяет соответствующие вероятности:  $P_1^{Al} = 0.34$ ,  $P_2^{Al} = 0.36$  и  $1 - \tilde{P}_{Al} = 0.88$ .

Аналогично определена вероятность  $1 - \tilde{P}_{Na}$  при соответствующих значениях  $P_1^{Na} = 0.2877$ ,  $P_2^{Na} = 0.31$ , в результате имеем  $1 - \tilde{P}_{Na} = 0.911$ .

Тогда на основании этих данных скорректированное значение активности образца получилось равным

$$\tilde{A}_{Al} = A_{Al} * \frac{1 - \tilde{P}_{Al}}{1 - \tilde{P}_{Na}} = 159.0 \text{ Бк.}$$

Различия формы источников учитывали через геометрический коэффициент коррекции, который был найден также с помощью программы MCNP4. Для этой цели провели два моделирования на расстоянии 0.7 см между источником и детектором. В первом использовали точечный источник  $Na^{22}$ , во втором источник был цилиндри-

ческой формы. В табл. 2 приведены результаты моделирования.

Из данных табл. 2 геометрический коэффициент коррекции определяли как отношение скоростей счета в ППП для цилиндрического и точечного источников:

$$C_{\text{geo}} = 0.8385.$$

С учетом всех коэффициентов коррекции активность образца получилась равной 189.6 Бк.

Таким образом, итоговое значение с учетом неопределенности измерения имеет вид

$$A_{\text{Al}} = 190 \pm 6 \text{ Бк.} \quad (3)$$

Среднее значение активности, полученной с помощью трех способов обработки результатов (1–3), вычисляют методом весовой функции по формуле [20]:

$$\bar{A} = \frac{\sum_{i=1}^3 A_i w_i}{\sum_{i=1}^3 w_i},$$

где  $A_i$  – значение активности, рассчитанное по  $i$ -му способу,  $w_i$  – соответствующий весовой множитель для этого способа.

Весовой множитель определяется неопределенностью результата измерения в соответствии с выражением  $w_i = 1/(\Delta A_i)^2$ .

В этом случае окончательный результат имеет вид

$$\bar{A}_{\text{Al}} = 166 \pm 3 \text{ Бк,}$$

где вычисление абсолютной погрешности активности радионуклида проводилось по формуле

$$\Delta A = \left( \sum_{i=1}^3 w_i \right)^{-0.5}.$$

Отметим, что определение активности  $\text{Al}^{26}$  по линии 511 кэВ не всегда может быть применимо. Обусловлено это тем, что данная линия возникает при распаде любых радионуклидов, претерпевающих  $\beta^+$ -распад ( $\text{Na}^{22}$ ,  $\text{Nb}^{92}$ ,  $\text{Au}^{194}$ ,  $\text{Y}^{88}$  и др. [15]) или имеющих близкую к 511 кэВ линию (например,  $\text{Cs}^{134}$  [15]). Поэтому их присутствие в образце может сильно повлиять на результаты измерений активности  $\text{Al}^{26}$ . Чтобы исключить такие ситуации, определение активности  $\text{Al}^{26}$  нужно проводить по линии 1808 кэВ. В этом случае измерение можно отнести к описанному выше третьему способу, а в качестве эталонного источника использовать источник с изотопом  $\text{Y}^{88}$ , обладающим линией с энергией 1836 кэВ, т.е. близкой к основной линии  $\text{Al}^{26}$  1808 кэВ. Кроме того, эта-

**Таблица 2.** Значения скоростей счета для источника  $\text{Na}^{22}$  в различных геометриях, полученные с помощью программы MCNP4

Радионуклид	$\text{Na}^{22}$ , 511 кэВ	
	точный	цилиндрический
Форма источника		
Скорость счета ППП	0.2651	0.2223

лонные источники  $\text{Y}^{88}$  более доступны, чем источники  $\text{Al}^{26}$ .

## ВЫВОДЫ

Определена активность образца жидкого раствора изотопа алюминия-26. По причине отсутствия калибровочного источника алюминия-26 пришлось отойти от стандартного метода определения активности образца с использованием эталонного источника того же изотопа. Определение активности осуществлялось тремя различными способами. Эти способы имели ряд отличительных особенностей.

Во-первых, расчет активности проводился по наиболее интенсивной линии изотопов, в частности использовалась линия с энергией 511 кэВ.

Во-вторых, для всех способов учитывались различные эффекты, оказывающие влияние на результат измерений. При малом расстоянии источника и детектора учитывались эффекты суммирования каскадных и аннигиляционных квантов, а также геометрический фактор, обусловленный различием формы источников.

Для учета различных факторов использовался программный комплекс MCNP4.

Значения активностей, полученные различными способами, составили  $168 \pm 5$ ,  $148 \pm 5$  и  $190 \pm 6$  Бк соответственно, а усредненный результат по методу весовых множителей соответствовал значению  $166 \pm 3$  Бк.

Комбинирование всех трех способов позволило получить результат с хорошей точностью, несмотря на влияние негативных факторов, таких как низкая активность образца и отсутствие необходимых эталонных источников для применения стандартного метода определения активности.

Отметим, что измерение активности  $\text{Al}^{26}$  может осуществляться по линии с энергией 1808 кэВ методом, соответствующим описанному выше третьему способу, при наличии доступных эталонных источников.

Работа выполнена при поддержке НИЦ “Курчатовский институт” (приказ от 14.08.2019 № 1808).

## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Chemistry of the Elements (2nd ed.) / Eds. Greenwood N.N., Earnshaw A. Butterworth-Heinemann, 1997. P. 216.
2. Aluminium-26. Nuclear Wallet Card // National Nuclear Data Center. 2021. <https://www.nndc.bnl.gov/>
3. WWW Table of Radioactive Isotopes. Aluminium-26 // The Lund/LBNL Nuclear Data Search. 1999. <http://nucleardata.nuclear.lu.se/toi/index.asp>
4. *Lichtenberg T.* // Nature Astronomy. 2019. V. 3. P. 307. <https://doi.org/10.1038/s41550-018-0688-5>
5. *de Pater I.* Planetary Sciences / Eds. de Pater I., Lissauer J.J. 2nd ed. Cambridge University Press, 2015. 647 p.
6. *El Eid M.F., Meyer B.S., The L.S.* // ApJ The Astrophysical J. 2004. № 611.1. P. 452. <https://doi.org/10.1086/422162>
7. *Woosley S.E., Heger A.* // Rev. Modern Physics. 2002. V. 74. № 4. P. 1015. <https://doi.org/10.1103/RevModPhys.74.1015>
8. *Moskovitz N., Gaidos E.* // Meteoritics Planetary Science. 2011. № 46 (6). P. 903. <https://doi.org/10.1111/j.1945-5100.2011.01201.x>
9. *Lederer-Woods C., Woods P.J., Davinson T. et al.* // Phys. Rev. C. 2021. V. 104. № 2. P. L032803. <https://doi.org/10.1103/PhysRevC.104.L022803>
10. *Overholt A.C., Melotta A.L.* // Earth and Planetary Sci. Lett. 2013 V. 377–378. P. 55. <https://doi.org/10.1016/j.epsl.2013.07.029>
11. *Zolotov M.Yu.* // Icarus. 2009. V. 204. № 1. P. 183. <https://doi.org/10.1016/j.icarus.2009.06.011>
12. *Evans J.C., Rancitelli L.A., Reeves J.H.* // Proc. Lunar Planet. Sci. Conf. 10th. Lunar and Planetary Institute. 1979. P. 1061. doi 1979LPSC...10.1061E.
13. *Zuber M.T., McSween H.Y., Binzel R.P. et al.* // Space Sci. Rev. 2011. V. 163. № 1–4. P. 77. [https://doi.org/10.1007/978-1-4614-4903-4\\_6](https://doi.org/10.1007/978-1-4614-4903-4_6)
14. *Dauphas N., Chaussidon M.* // Annual Review of Earth and Planetary Sci. 2011. № 39. P. 351. <https://doi.org/10.1146/annurev-earth-040610-133428>
15. *Васильев С.С., Михалева Т.Н., Руденко Н.П. и др.* // Атомная энергия. 1961. Т. 11. Вып. 4. С. 401.
16. *Краснов Н.Н., Дмитриев П.П., Севастьянов Ю.Г., Безматерных А.С.* // Атомная энергия. 1965. Т. 19. Вып. 1. С. 62.
17. *Руденко Н.П., Севастьянов А.М.* // Атомная энергия. 1965. Т. 18. Вып. 6. С. 649.
18. Универсальный мобильный спектрометрический комплекс “Колибри” (СКС-08П) // Грин Стар Группа предприятий. 2018. <http://www.greenstar.ru/kolibri.html>.
19. Блоки детектирования БДЭГ // Грин Стар Группа предприятий. 2018. <http://www.greenstar.ru/bdeg.html>.
20. *Даниленко В.Н.* “Активность радионуклидов в объемных образцах”» Методические рекомендации по выполнению измерений на сцинтилляционном гамма-спектрометре. М: ВНИИФТРИ, 1995.