

P6-2001-112

Д.В.Философов, А.Ф.Новгородов, Н.А.Королев,  
В.Г.Егоров, Н.А.Лебедев, З.З.Аксельрод<sup>1</sup>, Й.Брокманн<sup>2</sup>,  
Ф.Реш<sup>2</sup>

**РАЗВИТИЕ ОДНОДЕТЕКТОРНОГО МЕТОДА  
ИЗМЕРЕНИЯ ВОЗМУЩЕННЫХ УГЛОВЫХ  
ГАММА-ГАММА-КОРРЕЛЯЦИЙ  
ДЛЯ ИССЛЕДОВАНИЯ ФИЗИКО-ХИМИЧЕСКИХ  
СВОЙСТВ ВЕЩЕСТВА**

---

<sup>1</sup>Институт ядерной физики им. Д.В.Скобельцына, МГУ, Москва

<sup>2</sup>Институт ядерной химии, Университет им. Иоганна Гутенберга,  
Майнц, Германия

## Введение

Радиоактивные нуклиды широко применяются в фундаментальных и прикладных исследованиях. Очень часто при их использовании возникают задачи определения и контроля физико-химического состояния, в котором находится радионуклид (элемент) в исследуемой системе. Эти задачи позволяет решать метод возмущенных угловых  $\gamma\gamma$ -корреляций ( $\gamma\gamma$ -ВУК), который дает возможность исследовать свойства вещества в твердом, жидком и газообразном состояниях. Метод  $\gamma\gamma$ -ВУК, относящийся к методам физики сверхтонких взаимодействий (СТВ), основан, с одной стороны, на явлении угловой корреляции между направлениями вылета каскадных гамма-квантов (ядерно-физическая константа, характеристика конкретного радионуклида-зонда), с другой стороны, на возмущении этой корреляции за счет взаимодействия электрического квадрупольного и/или магнитного дипольного моментов ядра с электрическими и/или магнитными полями, создаваемыми электронным и ядерным окружением. Теория метода хорошо разработана и описана во многих статьях и монографиях [1,2].

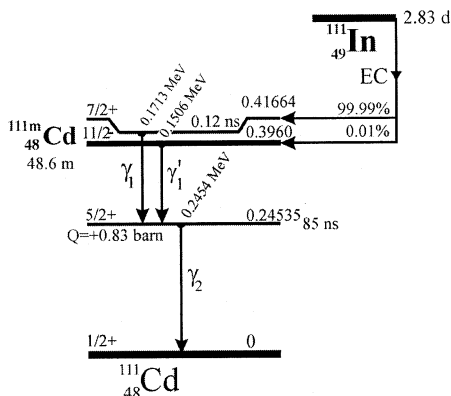


Рис. 1. Схемы распада  $^{111}\text{In}$  и  $^{111\text{m}}\text{Cd}$

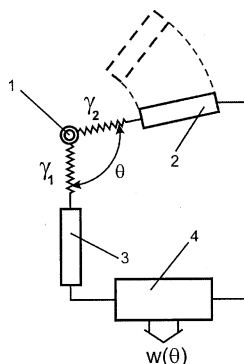


Рис. 2. Схема установки  $\gamma\gamma$ -ВУК:

1 - источник; 2,3 - детекторы;  
4 - схема совпадений

На рис. 1 показаны схемы распада для радионуклидов  $^{111}\text{In}$  и  $^{111\text{m}}\text{Cd}$ , часто используемых в методе  $\gamma\gamma$ -ВУК. Для измерений угловой зависимости относительной вероятности совпадения каскадных  $\gamma$ -квантов  $W(\theta)$  в традиционном методе  $\gamma\gamma$ -ВУК применяют установки, подобные показанной на рис.2.

Теоретически  $W(\theta, \infty)$  описывается следующим образом:

$$\overline{W(\theta, \infty)} = 1 + A_{22} \overline{G_2(\infty)} Q_2 P_2(\cos(\theta)) + A_{44} \overline{G_4(\infty)} Q_4 P_4(\cos(\theta)) + \dots, \quad (1)$$

где  $A_{ii}$  – коэффициенты угловой корреляции;  $P_i$  – полиномы Лежандра;  $Q_i$  – фактор, учитывающий конечные размеры детектора и источника;  $\overline{G_i(\infty)}$  – интегральный (по времени) фактор возмущения угловой корреляции.

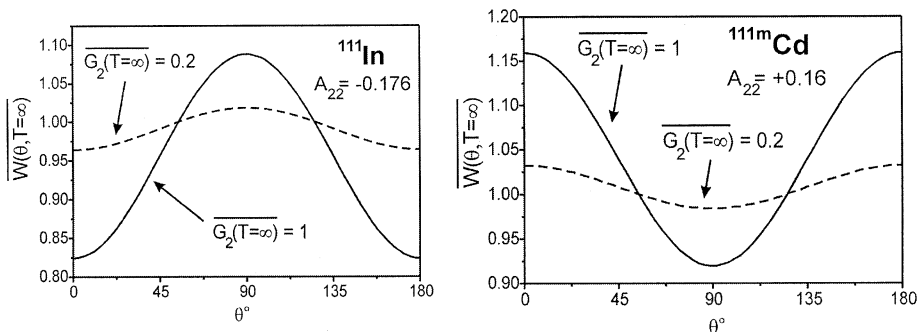


Рис. 3 Угловая зависимость относительной вероятности совпадения каскадных  $\gamma$ -квантов для  $^{111}\text{In}$  и  $^{111\text{m}}\text{Cd}$

На рис. 3 представлены относительные вероятности совпадения  $\overline{W(\theta, T = \infty)}$  каскадных  $\gamma$ -квантов для  $^{111}\text{In}$  (172 кэВ – 245 кэВ) и  $^{111\text{m}}\text{Cd}$  (150 кэВ – 245 кэВ). Для этих изотопов абсолютные величины  $A_{44} \ll A_{22}$ , поэтому в расчетах используются только  $A_{22}$ . Показанные кривые соответствуют: сплошные – невозмущенной угловой корреляции ( $\overline{G_2(\infty)} = 1$ ); пунктирные – возмущенной угловой корреляции ( $\overline{G_2(\infty)} = 0,2$ ). Такие зависимости реализуются для этих радионуклидов, например, в следующих случаях:

$\overline{G_2(\infty)} = 1$  соответствует их растворам в минеральных кислотах ("жидкий" образец), а

$\overline{G_2(\infty)} = 0,2$  – их гидроокисям ("твердый" образец) [3,4]. Видно, что для "твердого" и "жидкого" образцов имеется значительное различие в относительной вероятности совпадений при  $\theta = 0^\circ$  (для рассматриваемых радионуклидов она составляет 10-15%).

На рис. 4 показан  $\gamma$ -спектр  $^{111}\text{In}$ , получен-

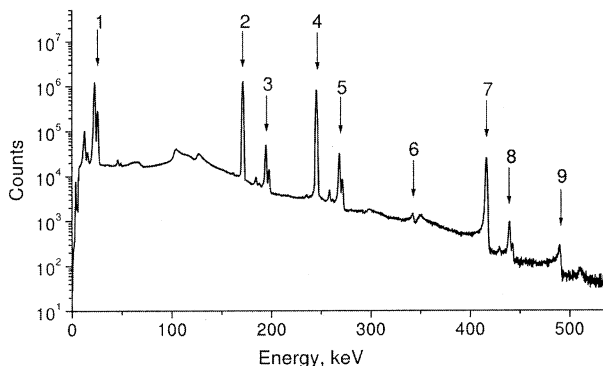


Рис. 4.  $\gamma$ -спектр  $^{111}\text{In}$ :

1 – пики рентгеновского излучения ( $K_{\alpha,\beta}$ ); 2,4 – пики каскадных  $\gamma$ -квантов (171,3 и 245,4 кэВ); 3,5 – пики суммирования рентгеновского излучения и каскадных  $\gamma$ -квантов; 6,9 – пики случайных совпадений (171,3+171,3 и 245,4+245,4); 7 – пик суммирования каскадных  $\gamma$ -квантов (171,3+245,4); 8 – пик тройного суммирования (171,3+245,4+  $K_{\alpha,\beta}$ )

ный с использованием HPGe-детектора с бериллиевым окном. На спектре видны как пики, соответствующие энергиям  $\gamma$ - и рентгеновских излучений этих изотопов, – одиночные пики (ОП), так и пики, соответствующие суммам энергий этих излучений в различных комбинациях, – пики суммирования (ПС). Появление ПС происходит из-за того, что энергия двух и более  $\gamma$ -квантов регистрируется в детекторе как одиночный импульс. ПС называют истинным (ИПС), если суммируются генетически связанные излучения (соответствующие одному акту распада радионуклида); и пик суммирования называют случайным (СПС), если регистрируются генетически не связанные излучения (соответствующие разным актам распада радионуклидов).

Регистрация генетически связанных излучений в ИПС *на одном детекторе* может быть сопоставлена с их регистрацией двумя детекторами в традиционном методе  $\gamma\gamma$ -ВУК. Относительная вероятность регистрации каскадных гамма-квантов  $\gamma_n, \gamma_m$  в ИПС зависит от  $\overline{W}(\theta, \infty)$ . Обозначим эту вероятность при конкретных значениях  $A_{ii}, G_i(\infty), Q_i$  как

$$R_{\gamma_n + \gamma_m} = \overline{W}_{A_{ii}, G_i, Q_i}^{\gamma_n, \gamma_m}(\theta = 0^0, \infty) . \quad (2)$$

Впервые на возможность исследования  $\gamma\gamma$ -ВУК на основе анализа пика суммирования при измерении на одном полупроводниковом детекторе для  $^{181}\text{Hf}$  указал де Брюн [5]. Определение физико-химического состояния вещества на основе пиков суммирования для  $^{111}\text{In}$  исследовали Ишихара и др. [6,7]. Однако несмотря на перспективность этого метода использование его по ряду причин не получило широкого распространения.

### Теоретическое обоснование одноканального метода измерения $\gamma\gamma$ -ВУК

Рассмотрим более детально принцип одноканального метода измерения  $\gamma\gamma$ -ВУК (ОВУК) для радионуклидов  $^{111}\text{In}$  и  $^{111m}\text{Cd}$ . Вероятности регистрации ПС и ОП для малых нагрузок и малых полных эффективностей регистрации  $\gamma$ -квантов (когда  $S_{\text{оп}} \gg S_{\text{ипс}} \gg S_{\text{спс}}$ ) в случае точечного источника определяются как

$$S_{\gamma_1} = \varepsilon_{\gamma_1} \cdot y_{\gamma_1} \cdot A \cdot t, \quad (3)$$

$$S_{\gamma_2} = \varepsilon_{\gamma_2} \cdot y_{\gamma_2} \cdot A \cdot t, \quad (4)$$

$$S_{\gamma_1 + \gamma_2} = \varepsilon_{\gamma_1} \cdot y_{\gamma_1} \cdot \varepsilon_{\gamma_2} \cdot (1 - y_e(\gamma_2)) \cdot A \cdot t \cdot R_{\gamma_1 + \gamma_2}, \quad (5)$$

где  $S_{\gamma_n}$  – площади ОП;  $S_{\gamma_n + \gamma_m}$  – площади ИПС;  $A$  – активность источника;

$t$  – время измерения;  $\varepsilon_{\gamma_n}$  – эффективность регистрации  $\gamma_n$ -излучения в пике полного поглощения в данной "геометрии" источник – детектор;  $y_{\gamma_n}$  – выход  $\gamma_n$ -излучения на 1 распад радионуклида;  $y_e(\gamma_n)$  – выход конверсионных электронов для перехода, соответствующего  $\gamma_n$ .

Так как для  $^{111}\text{In}$   $y_{\gamma_2} = (1 - y_e(\gamma_2))$ , то

$$\frac{S_{\gamma_1+\gamma_2}}{S_{\gamma_1} \cdot S_{\gamma_2}} = \frac{R_{\gamma_1+\gamma_2}}{A \cdot t} \quad (6)$$

Таким образом, если известна абсолютная активность источника, то можно на одном детекторе определять величину  $R_{\gamma_1+\gamma_2}$ . На практике при измерении ряда образцов в одинаковой геометрии в качестве меры  $R_{\gamma_1+\gamma_2}$  можно использовать отношение

$$\frac{S_{\gamma_1+\gamma_2}}{S_{\gamma_2}} \quad \text{либо} \quad \frac{S_{\gamma_1+\gamma_2}}{S_{\gamma_1}}.$$

При таком подходе, который применяли Ишихара и др. [6,7], эти величины пропорциональны эффективностям регистрации  $\varepsilon_{\gamma_1}$  и  $\varepsilon_{\gamma_2}$  соответственно. В этом случае неточность в "геометрии" и самопоглощение в образце может привести к относительно большим ошибкам в получаемых результатах.

Мы попытались устранить эти затруднения, включив в рассмотрение рентгеновское излучение  $K_{\alpha,\beta}$ , которое появляется с вероятностью  $y_{K_{\alpha,\beta}}$  каждый раз, когда образуется дырка на К-оболочке. Вероятность регистрации ИПС  $\gamma_1$  и  $\gamma_2$  с рентгеновским излучением описывается следующим образом:

$$S_{K_{\alpha,\beta}} = \varepsilon_{K_{\alpha,\beta}} \cdot y_{K_{\alpha,\beta}} \cdot (EC_k + y_{e(K)}(\gamma_1) + y_{e(K)}(\gamma_2)) \cdot A \cdot t, \quad (7)$$

$$S_{K_{\alpha,\beta}+\gamma_1} = \varepsilon_{\gamma_1} \cdot y_{\gamma_1} \cdot \varepsilon_{K_{\alpha,\beta}} \cdot y_{K_{\alpha,\beta}} \cdot (EC_k + y_{e(K)}(\gamma_2)) \cdot A \cdot t \cdot R_{K_{\alpha,\beta}+\gamma_1}, \quad (8)$$

$$\frac{S_{K_{\alpha,\beta}+\gamma_1}}{S_{K_{\alpha,\beta}} \cdot S_{\gamma_1}} = \frac{1}{N_{K_{\alpha,\beta}+\gamma_1}} \cdot \frac{R_{K_{\alpha,\beta}+\gamma_1}}{A \cdot t}, \quad (9)$$

где

$$N_{K_{\alpha,\beta}+\gamma_1} = \frac{EC_k + y_{e(K)}(\gamma_2)}{EC_k + y_{e(K)}(\gamma_1) + y_{e(K)}(\gamma_2)}, \quad (10)$$

$EC_k$  – доля захвата электрона с К-оболочки при ЕС-распаде;  $y_{e(K)}(\gamma_n)$  – выход электронов при конверсии на К-оболочке для перехода, соответствующего  $\gamma_n$ .

Разделив выражение (6) на (9) с учетом того, что  $R_{K_{\alpha,\beta}+\gamma_1} = 1$ , получим

$$R_{\gamma_1+\gamma_2} = N_{K_{\alpha,\beta}+\gamma_1} \cdot \frac{S_{\gamma_1+\gamma_2} \cdot S_{K_{\alpha,\beta}}}{S_{\gamma_2} \cdot S_{\gamma_1+K_{\alpha,\beta}}} \quad (11)$$

и аналогично

$$R_{\gamma_1+\gamma_2} = N_{K_{\alpha,\beta}+\gamma_2} \cdot \frac{S_{\gamma_1+\gamma_2} \cdot S_{K_{\alpha,\beta}}}{S_{\gamma_1} \cdot S_{\gamma_2+K_{\alpha,\beta}}}, \quad (12)$$

где

$$N_{K_{\alpha,\beta}+\gamma_2} = \frac{EC_k + y_{e(K)}(\gamma_1)}{EC_k + y_{e(K)}(\gamma_1) + y_{e(K)}(\gamma_2)}. \quad (13)$$

Выражения (11) и (12) удобны для нахождения  $R_{\gamma_1+\gamma_2}$  благодаря их симметричности: в числителе и в знаменателе по одному члену ОП и ПС. Для их определения не требуется знания величин абсолютной активности образца или эффективности регистрации  $\gamma$ -квантов.

Вывод формул для  $^{111m}\text{Cd}$  и их анализ, соответственно, аналогичен приведенному выше:

$$R_{\gamma_1+\gamma_2} = N'_{K_{\alpha,\beta}+\gamma_2} \cdot \frac{S_{\gamma_1+\gamma_2} \cdot S_{K_{\alpha,\beta}}}{S_{\gamma_1} \cdot S_{\gamma_2+K_{\alpha,\beta}}}, \quad (14)$$

$$N'_{K_{\alpha,\beta}+\gamma_2} = \frac{y_{e(K)}(\gamma_1')}{y_{e(K)}(\gamma_1') + y_{e(K)}(\gamma_2)}. \quad (15)$$

В нашем случае для радионуклидов  $^{111}\text{In}$  и  $^{111m}\text{Cd}$  с целью определения факторов возмущения угловой корреляции ( $R_{\gamma_1+\gamma_2}$ ) мы проводим нормировку ИПС каскадных  $\gamma_n$ -квантов на ИПС, включающие рентгеновское излучение. Для других изотопов, кроме того, возможна нормировка на ИПС каскадных  $\gamma_n$ -излучений, для которых угловая корреляция либо отсутствует, либо, если она есть, не претерпевает возмущения.

## Экспериментальная часть

Измерения с радионуклидами  $^{111}\text{In}$  и  $^{111\text{m}}\text{Cd}$  были проведены на коаксиальном HPGe-детекторе объемом  $200 \text{ см}^3$ . Активность измеряемых образцов составляла  $\approx 40 \text{ кБк}$ . За время экспозиции (0,5-2 часа) количество событий в ИПС составляло  $10^5$ - $10^6$ . Рассчитанные на основе табличных данных о параметрах распада радионуклидов [8,9] значения  $N_{K_{\alpha,\beta}+\gamma_n}$  соответственно равны:

$$N_{K_{\alpha,\beta}+\gamma_1} = 0,9176(10), N_{K_{\alpha,\beta}+\gamma_2} = 0,9507(10), N'_{K_{\alpha,\beta}+\gamma_2} = 0,897(1).$$

Была проведена серия измерений с одним образцом –  $^{111}\text{In}$  с высокой удельной активностью в растворе соляной кислоты (рН=1) объемом 0,4 мл – в двух "геометриях", а затем, после увеличения объема до 0,8 мл, еще раз в тех же геометрических условиях. Результаты представлены в табл. 1. Из них видно, что изменение объема образца в два раза не влияет на значения  $R_{\gamma_1+\gamma_2}$ , рассчитанные по предложенному нами методу (11,12).

Таблица 1

Объем раствора, мл	Расстояние образец-детектор, мм	Количество измерений	Средневзвешенное значение (в скобках приведены статистические ошибки)		
			$R_{\gamma_1+\gamma_2}$	$S_{\gamma_1+\gamma_2} / S_{\gamma_1}$	$S_{\gamma_1+\gamma_2} / S_{\gamma_2}$
0,4	39	6	0,8867(5)	0,03736(4)	0,04714(4)
0,8	39	6	0,8850(14)	0,03618(3)	0,04562(4)
0,4	23	8	0,9134(5)	0,06773(5)	0,08706(6)
0,8	23	6	0,9138(5)	0,06611(5)	0,08484(5)

Уменьшение расстояния почти в два раза приводит к небольшому изменению  $R_{\gamma_1+\gamma_2}$  (это вызвано изменением геометрического фактора Q). Величины, полученные из соотношений  $S_{\gamma_1+\gamma_2} / S_{\gamma_{1(2)}}$ , сильно отличаются при изменении как объема образца, так и расстояния образец – детектор. Это объясняется зависимостью этих величин как от геометрического фактора Q, так и от эффективностей регистрации  $\varepsilon_{\gamma_n}$ . Выше отмечалось, что максимальное различие  $R_{\gamma_1+\gamma_2}$  для случаев "раствор" и "осадок" для  $^{111}\text{In}$  составляет всего 15 % (см. рис. 3), а для реальных условий измерения ( $Q \approx 0,8$ ) оно составляет 11%. Вероятно, именно поэтому подход де Брюна - Ишихары использования пика суммирования не нашел широкого применения в изучении физико-химического состояния вещества.

Нами было проведено исследование растворов с использованием предложенного метода определения  $R_{\gamma_1+\gamma_2}$ . Результаты измерений в кислой и щелочной областях для образцов - водных растворов объемом 500 мкл с ионной силой  $\mu=0,1$

(HNO<sub>3</sub>, NaNO<sub>3</sub>, NaOH) и концентрацией добавленного носителя 10<sup>-5</sup> М для In и 10<sup>-3</sup> М для Cd – представлены в табл. 2.

Таблица 2

Изотоп	рН	$R_{\gamma_1+\gamma_2}$ (эксп)				$R_{\gamma_1+\gamma_2}$ (расч) по формуле (2) при $Q_2=1$
		по формуле (11)	по формуле (12)	по формуле (14)	среднее	
<sup>111</sup> In	1,04	0,869(5)	0,863(5)	-	0,866(5)	0,824 ("жидкий")
	11,89	0,982(6)	0,971(6)	-	0,977(6)	0,965 ("твердый")
<sup>111m</sup> Cd	2,0	-	-	1,095(7)	1,095(7)	1,16 ("жидкий")
	12,0	-	-	0,972(6)	0,972(6)	1,032 ("твердый")

Известно, что In и Cd при рН ≈ 1-2 находятся в истинно растворенном состоянии, а при рН ≈ 12 – в составе гидроокисей [10]. Из табл. 2 видно, что значения  $R_{171+245}$  для In и  $R_{150+245}$  для Cd существенно различаются для различных состояний данных элементов (раствора и осадка).

В табл. 2 также представлены  $R_{расч}$ , рассчитанные по формуле (2) при значении  $Q_2=1$  для величин  $\overline{G_2(\infty)}=1$  ("жидкий") и  $\overline{G_2(\infty)}=0,2$  ("твердый"). Важно отметить, что значения  $R_{эксп}$  для состояний "раствор" и "осадок" согласуются с расчетными значениями  $R_{расч}$  "жидкий" и "твердый".

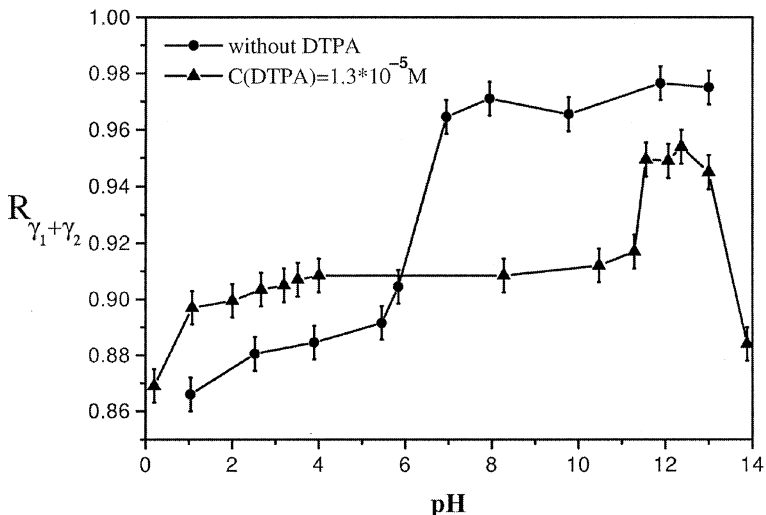


Рис. 5. Зависимость  $R_{эксп}$  для <sup>111</sup>In от pH и концентрации ДТРА



Были проведены эксперименты по изучению гидролиза  $\text{In}^{(111)\text{In}}$  и его комплексообразования с ДТРА методом  $\gamma\gamma$ -ОВУК. Результаты измерений представлены на рис. 5.

В первой серии экспериментов изменяли величину pH в отсутствие ДТРА. Величина  $R_{\gamma_1+\gamma_2}$  резко возрастает в интервале  $\text{pH} = 5\div 7$ , что обусловлено переходом радионуклида из формы  $[\text{In}(\text{H}_2\text{O})_6]^{3+}$  в нерастворимую форму  $\text{In}(\text{OH})_3$ . Такой переход хорошо согласуется с данными о гидролизе индия [10]. Различие значений  $R_{\gamma_1+\gamma_2}$  в кислых и щелочных растворах объясняется различием факторов возмущения  $\overline{G_2(\infty)}$  для  $\text{In}^{3+}$  в случае химических форм  $[\text{In}(\text{H}_2\text{O})_6]^{3+}$  ("жидкий",  $\overline{G_2(\infty)}=1$ ) и  $\text{In}(\text{OH})_3$  ("твердый",  $\overline{G_2(\infty)}=0,2$ ).

Вторая серия экспериментов была проведена в присутствии ДТРА (концентрация  $1,3 \cdot 10^{-5}$  М). Увеличение  $R_{\gamma_1+\gamma_2}$  для растворов с ДТРА в области  $\text{pH} = 3,5\div 11$  (по сравнению с  $\text{pH}=1$ ) объясняется тем, что In в этой области образует устойчивые комплексы с ДТРА, при этом увеличивается размер молекулярной частицы, в которую входит  $^{111}\text{In}$ , и  $\overline{G_2(\infty)}$  начинает уменьшаться по сравнению с  $\overline{G_2(\infty)}$  для  $^{111}\text{In}$  в кислом растворе ( $R_{\gamma_1+\gamma_2}$  растет). При  $\text{pH} > 10$  комплекс In-ДТРА начинает разрушаться и образуется  $\text{In}(\text{OH})_3$ , в результате чего  $\overline{G_2(\infty)}$  начинает стремиться к 0,2 ( $R_{\gamma_1+\gamma_2}$  растет). При  $\text{pH} > 12,5$  наблюдается растворение осадка с образованием  $\text{In}(\text{OH})_4^-$  и  $\overline{G_2(\infty)}$  снова растет до 1 ( $R_{\gamma_1+\gamma_2}$  уменьшается).

Для более детального рассмотрения (подтверждения) наблюдаемого эффекта мы провели еще одну серию экспериментов с  $^{111}\text{In}$  на HPGe-детекторе с бериллиевым окном, имеющим объем  $65 \text{ см}^3$ . Измерения были проведены на образцах (объемом  $V=100$  мкл) на расстоянии 2,5 см от детектора. Значения  $R_{171+245}$  для кислой и щелочной областей приведены в табл. 3.

Таблица 3

Изотоп	pH	$R_{\gamma_1+\gamma_2}$ (эксп)			$R_{\text{расч}} (Q_2=1)$
		по формуле (11)	по формуле (12)	среднее	
$^{111}\text{In}$	1,25	0,896(5)	0,891(5)	0,893(5)	0,824 ("жидкий")
	12,4	0,985(6)	0,979(6)	0,982(6)	0,965 ("твердый")

Отметим, что результаты измерений, полученные на разных детекторах, хорошо согласуются между собой.

Были проведены эксперименты на "больших" образцах – водных растворах объемом 100 мл. Результаты представлены в табл. 4.

Таблица 4

	Объем образца	In <sup>3+</sup>	In-DTPA	In(OH) <sub>3</sub> коллоид
$R_{\gamma_1+\gamma_2}$ (эксп)	100 мкл	0,893(5)	0,928(6)	0,982(6)
	100 мл	0,738(4)	0,782(5)	0,845(5)

Из табл. 4 видно, что абсолютные значения  $R_{\gamma_1+\gamma_2}$  для "больших" образцов (объем которых сравним с объемом детектора) существенно отличаются от  $R_{\gamma_1+\gamma_2}$  для "маленьких" (близких к точечным) образцов того же химического состава. Однако относительные изменения  $R_{\gamma_1+\gamma_2}$  для "больших" образцов соответствуют относительным изменениям  $R_{\gamma_1+\gamma_2}$  для "маленьких" образцов. Это говорит о возможности проведения измерений методом ОВУК на больших образцах, например, для определения формы нахождения радиофармпрепаратов *in vivo*.

### Обсуждение полученных результатов

Для измерений с образцами, объем которых мал по сравнению с объемом детектора, величины  $R_{\gamma_1+\gamma_2}$  (эксп) для <sup>111</sup>In, вычисленные по формуле (11), незначительно отличаются от величин  $R_{\gamma_1+\gamma_2}$ , вычисленных по формуле (12), что говорит о воспроизводимости результатов, получаемых по этим формулам, и о надежности предложенного метода. Это подтверждается также тем, что как для <sup>111</sup>In, так и для <sup>111m</sup>Cd значения  $R_{\gamma_1+\gamma_2}$  (эксп) для состояний "раствор" и "осадок" согласуются с расчетными значениями  $R_{\gamma_1+\gamma_2}$  (расч) "жидкий" и "твердый". Явно видимая зависимость значений  $R_{\gamma_1+\gamma_2}$  (эксп) от физико-химического состояния, в котором находится радионуклид, позволяет говорить о перспективности применения метода  $\gamma\gamma$ -ОВУК для исследования физико-химических свойств вещества.

Оптимальными условиями измерений с германиевым детектором с бериллиевым окном как для <sup>111</sup>In, так и для <sup>111m</sup>Cd, на основе проведенных нами исследований, являются следующие: активность образца должна быть  $\approx 30 - 60$  кБк; постоянное расстояние от края детектора до образца выбирается  $\approx 2 - 4$  см. При этих условиях загрузка составляет 7000-8000 соб./с, полная эффективность регистрации гамма-квантов с энергией 245,3 кэВ составляет  $\approx 3 - 5\%$  и относительная

ошибка измерения при расчете  $R_{\gamma_1+\gamma_2}$  по формулам (11), (12) и (15) (при экспозиции порядка 1 часа) не превышает 1 %.

### Заключение и выводы

Показано, что значения  $R_{\gamma_1+\gamma_2}$ , найденные по предложенному нами методу, в малой степени зависят от характеристик детектора, расстояния детектор–образец, объема образца и т.д., что позволяет использовать их в качестве надежных параметров при определении физико-химического состояния, в котором находится радионуклид-зонд.

Кроме рассмотренных изотопов в данном методе можно применять, например,  $^{199m}\text{Hg}$ ,  $^{133}\text{Ba}$ ,  $^{204m}\text{Pb}$  или  $^{118m}\text{Sb}$ . Однако общее число таких изотопов не велико, поскольку, кроме обычных требований к применяющимся в методе ВУК изотопам, добавляется еще ряд других. Так, необходимо, чтобы в схеме распада изучаемого предложенным методом радионуклида отсутствовали достаточно интенсивные одиночные и/или другие каскадные  $\gamma$ -переходы, равные или близкие по энергии исследуемому  $\gamma$ -каскаду.

Авторы выражают благодарность руководству ЛЯР ОИЯИ за предоставленные возможности проведения облучений на У-200, фонду DFG за частичную финансовую поддержку работы и М. Менделю за помощь в проведении экспериментов.

### Список литературы

1. *Frauenfelder H., Steffen R.M.* Alpha-, Beta, and Gamma-ray Spectroscopy/ Ed. K. Siegbahn. Amsterdam, 1965. V.2, P.97-1198.
2. *Lerf A., and Butz T.* Nuclear Quadrupole Interaction and Time-Resolved Perturbed  $\gamma\gamma$ -Angular Correlation Spectroscopy: Applications in Chemistry, Material Science and Biophysical chemistry / Angew. Chem. Int. Ed. Engl., 1987. V.26, P.110-126.
3. *Demille G.R. et al.* Perturbed gamma-ray directional correlation studies of  $\text{In}^{3+}$  complexing in aqueous solution / Chemical Physics Letters, 1976. V. 44, No.1. P.164-168.
4. *Akselrod Z.Z. et al.*  $^{111}\text{Cd}$  Time Differential Perturbed Angular Correlation Studies of the High Specific Activity  $^{111}\text{In}$ -Aqueous Solutions // Z. Naturforsch. 2000. V. 55a, P.151-154.
5. *De Bruin M., Korthoven P.J.M.* // Radiochem. Radioanal. Letters. 1975. V.21. P.287
6. *Yoshihara K. et al.* Chemical and environmental effects on  $\gamma$ -ray sum peak intensity of  $^{111}\text{In}$  due to perturbed angular correlation of cascade  $\gamma$ -emission // Radiochem. Radioanal. Letters, 1983. V.58, P.9.

7. *Yoshihara K. et al.* "Sum peak method" applied to study the chemical interaction between indium bovine serum albumin. // *Radiochem. Radioanal. Letters*. 1983. V. **58**, P.17.
8. *Lederer C.M., Shirley V.S.* Table of Isotopes, 7th ed., Wiley, New York, 1978.
9. *Sowby F.D.* Radionuclide transformations. Energy and Intensity of Emissions. ICRP Publication 38. 1983.
10. *Baes C.F., Mesmer R.E.* The Hydrolysis of Cations / Krieger Publisher Company, Inc., Krieger Drive Malabar, Florida, 1986.

---

Рукопись поступила в издательский отдел  
29 мая 2001 года.

Философов Д.В. и др.

P6-2001-112

Развитие ододетекторного метода измерения возмущенных угловых гамма-гамма-корреляций для исследования физико-химических свойств вещества

Разработан новый подход к измерению возмущенных угловых  $\gamma\gamma$ -корреляций (ВУК) с применением одного детектора. Для количественной оценки величины фактора возмущения используется отношение площади пика суммирования двух  $\gamma$ -квантов исследуемого каскада (параметра, подверженного влиянию возмущения угловой корреляции) к площади пика суммирования одного из  $\gamma$ -квантов каскада и рентгеновского кванта (параметру, не подверженному влиянию возмущения угловой корреляции). Данный подход продемонстрирован на примере радионуклидов  $^{111}\text{In}$  и  $^{111m}\text{Cd}$ .

Работа выполнена в Лаборатории ядерных проблем им. В.П.Джелепова ОИЯИ.

Сообщение Объединенного института ядерных исследований. Дубна, 2001

Перевод авторов

Filossofov D.V. et al.

P6-2001-112

Development of the Gamma-Gamma Perturbed Angular Correlation One-Detector Method for the Studies of the Physicochemical Properties of Matter

A new method of the perturbed angular  $\gamma\gamma$ -correlation (PAC) measurements was developed using one detector only. For the perturbation factor quantification the relation of the summing peak composed of two cascade  $\gamma$ -rays of study (the perturbation-affected parameter) to the summing peak composed of one  $\gamma$ -ray and X-ray (the perturbation non-affected parameter) was used. This method was demonstrated for the  $^{111}\text{In}$  and  $^{111m}\text{Cd}$  radionuclides.

The investigation has been performed at the Dzheleпов Laboratory of Nuclear Problems, JINR.

Communication of the Joint Institute for Nuclear Research. Dubna, 2001

Редактор А.Н.Шабашова. Макет Н.А.Киселевой

Подписано в печать 25.06.2001  
Формат 60 × 90/16. Офсетная печать. Уч.-изд. л. 1,2  
Тираж 310. Заказ 52733. Цена 1 р. 20 к.

Издательский отдел Объединенного института ядерных исследований  
Дубна Московской области