

**ФИЗИЧЕСКИЕ ПРИБОРЫ ДЛЯ ЭКОЛОГИИ,
МЕДИЦИНЫ, БИОЛОГИИ**

УДК 539.1.074

**НИЗКОФОНОВАЯ УСТАНОВКА ПОВЫШЕННОЙ
ЧУВСТВИТЕЛЬНОСТИ ДЛЯ ОБНАРУЖЕНИЯ
И ИЗМЕРЕНИЯ РАДИОАКТИВНЫХ ПРИМЕСЕЙ**

© 2019 г. А. И. Алешин, А. М. Бакаляров, С. В. Жуков,
В. И. Лебедев, С. Б. Сазонов*

*Национальный исследовательский центр “Курчатовский институт”
Россия, 123182, Москва, пл. Академика Курчатова, 1*

** e-mail: sbsazonov@mail.ru*

Поступила в редакцию 15.05.2018 г.

После доработки 15.05.2018 г.

Принята к публикации 27.06.2018 г.

Описана низкофоновая компактная установка для измерения радиоактивных примесей в пробах различных материалов. В установке используются два комбинированных сцинтилляционных детектора, состоящих из двух кристаллов с различными временами высвечивания. По уровню чувствительности установка может занять нишу между переносными приборами радиационного контроля, обладающими недостаточной для ряда применений чувствительностью, и уникальными высокочувствительными крупногабаритными установками. Она может быть прототипом установок радиационного контроля проб для применения в широкой области.

DOI: 10.1134/S0032816219010026

1. ВВЕДЕНИЕ

Разработка γ -спектрометров, в том числе для выявления радиационных загрязнений и отбора радиационно-чистых материалов, остается актуальной задачей [1]. Целью настоящей работы является создание низкофоновой установки (н.ф.у.) для обнаружения и измерения количества радиоактивных примесей в пробах различных материалов, которая отличалась бы повышенной чувствительностью и высокой достоверностью результатов измерений, с одной стороны, и достаточной компактностью – с другой. Такая установка смогла бы занять нишу между переносными приборами радиационного контроля, не обладающими достаточной чувствительностью для ряда применений, и уникальными высокочувствительными установками, которые имеются в некоторых научно-исследовательских центрах, но отличаются большими габаритами и размещены, как правило, в подземных лабораториях. Предполагается, что такая установка должна быть небольших размеров, способна функционировать на поверхности Земли и не требовать каких-либо специальных условий для своего размещения.

2. ГАММА-СПЕКТРОМЕТР Н.Ф.У.

Основным узлом н.ф.у. является сцинтилляционный γ -спектрометр. Прежде всего, для по-

вышения чувствительности аппаратуры были приняты меры, обеспечивающие эффективное подавление фона. Как известно, уровень фона определяется двумя составляющими – внутренней и внешней. Внутренняя составляющая определяется степенью радиационной чистоты материалов, из которых изготовлен спектрометр, а внешняя – наличием внешнего фонового излучения, которое в свою очередь состоит из радиоактивного излучения материалов, окружающих установку, и космического излучения на поверхности Земли. Для подавления фона применяется активная и пассивная защита.

В предлагаемом проекте н.ф.у. (рис. 1) спектрометр состоит из двух комбинированных детекторов, верхнего и нижнего, каждый из которых, в отличие от стандартных сцинтилляционных детекторов, содержит по два коаксиальных цилиндрических кристалла с различными временами высвечивания – спектрометрического 3 и защитного 2.

Спектрометрический кристалл NaI(Tl) диаметром 120 мм и высотой 150 мм имеет колодец для проб (4) диаметром 40 мм и глубиной 100 мм. Спектрометрический кристалл размещен внутри защитного кристалла CsI(Tl), имеющего форму стакана с толщиной стенок и дна 50 мм. Между кристаллами обеспечен оптический контакт, что позволяет регистрировать сцинтилляционные

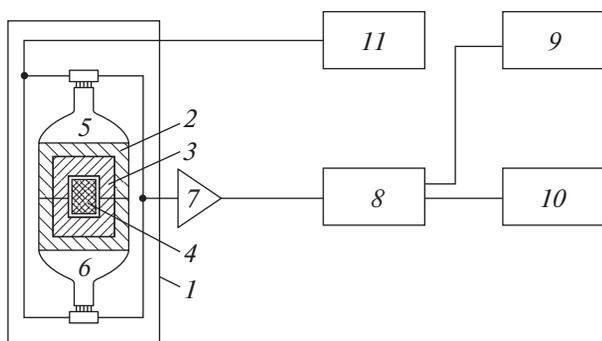


Рис. 1. Схема низкофоновой установки. 1 – детектор γ -спектрометра; 2 – защитный кристалл; 3 – спектрометрический кристалл; 4 – исследуемая проба; 5, 6 – ФЭУ-1 и ФЭУ-2; 7 – предусилитель; 8 – схема разделения по форме импульса; 9 – амплитудный анализатор спектрометрического кристалла; 10 – амплитудный анализатор защитного кристалла; 11 – источник питания.



Рис. 2. Фотография низкофоновой установки.

импульсы в обоих кристаллах одним фотоэлектронным умножителем (ф.э.у.). Комбинированный сцинтиллятор заключен в контейнер 1 из нержавеющей стали диаметром 235 мм и высотой 210 мм. Со стороны дна защитного кристалла в контейнере имеется окно из кварцевого стекла для низкофонового фотоумножителя ФЭУ-172.

Так как времена высвечивания спектрометрического и защитного сцинтилляторов различны, то события, имеющие место в каждом кристалле, с помощью электронной схемы разделения импульсов по форме могут регистрироваться раздельно. В режиме антисовпадений события, зарегистрированные в обоих кристаллах одновременно, исключаются, и для дальнейшего анализа отбираются события, зарегистрированные только в спектрометрическом кристалле. Верхний 5 и нижний 6 ф.э.у. расположены на торцах защитного кристалла и через предусилитель 7 подключены к входу схемы разделения 8 по форме импульса. Один выход схемы 8 подключен к анализатору импульсов спектрометрического кристалла 9, а второй – к анализатору амплитуд импульсов 10 защитного кристалла. Питание ф.э.у. осуществляется от единого источника высокого напряжения 11.

Верхний и нижний комбинированные детекторы состыкованы колодцами для проб вплотную друг к другу, что обеспечивает, благодаря замкнутости контура защитных кристаллов, эффективную и компактную активную защиту спектрометрической установки. При этом в два раза увеличивается объем исследуемых проб и обеспечиваются условия 4 π -геометрии измерений.

Детекторы изготовлены из низкофоновых материалов с использованием технологии дополнительной очистки исходного сырья от рубидия, со-

держашего долгоживущий β -активный изотоп ^{87}Rb с граничной энергией электронов 0.283 МэВ и периодом полураспада $4.81 \cdot 10^{10}$ лет.

3. УСТРОЙСТВО Н.Ф.У.

Общий вид детектора в сборе с ф.э.у. и крепежными элементами для монтажа показан на рис. 2. (Для наглядности на фотографии показан только нижний детектор.)

При выборе конструкции пассивной защиты спектрометра была измерена эффективность подавления внешнего фона такими защитными материалами, как свинец (блоки размером $50 \times 100 \times 200$ мм), вольфрам, тефлон, электролитическая медь и борированный полиэтилен.

В качестве детектора в этих измерениях использовался сцинтилляционный блок NaI(Tl) размером $100 \times 100 \times 200$ мм с ФЭУ-110, которым измерялся энергетический спектр фона в диапазоне энергий 0.1–1.0 МэВ при его окружении указанными выше защитными материалами в разной конфигурации. На основе анализа полученных результатов для н.ф.у. была принята трехслойная комбинация пассивной защиты:

- наружный слой – борированный полиэтилен толщиной 80 мм (блоки нейтрон-стоп);
- средний слой – свинец толщиной 150 мм;
- внутренний слой – электролитическая медь толщиной 30 мм.

Борированный полиэтилен служит для подавления нейтронной компоненты внешнего фона. Электролитическая медь, являясь более радиаци-

онно-чистым материалом, чем свинец, служит защитой от γ -излучения возможных радиоактивных примесей в свинце. Следует отметить, что защитный кристалл комбинированного детектора, изготовленный из радиационно-чистого материала, обеспечивает дополнительную пассивную защиту спектрометрического кристалла.

Гамма-спектрометр, состоящий из двух комбинированных NaI(Tl)–CsI(Tl) детекторов, установлен на четырех вертикальных направляющих во внутренней полости пассивной защиты. Полость имеет размеры $240 \times 240 \times 820$ мм и ограничена пластинами из электролитической меди, которые являются внутренним слоем пассивной защиты и одновременно основой конструкции установки. Снаружи медные пластины обложены свинцовыми блоками и блоками нейтрон-стоп, образующими соответственно средний и наружный слои пассивной защиты. В верхней части пластин смонтированы две горизонтальные направляющие, по которым перемещается раздвижная крышка защиты, состоящая из двух половин. При установке и извлечении пробы половины крышки раздвигаются, верхний комбинированный детектор спектрометра выдвигается по направляющим и удаляется из установки с помощью отдельного грузоподъемного устройства. Габариты и масса н.ф.у. составляют соответственно $800 \times 800 \times 1350$ мм и ~ 4.5 т. При измерении проб с достаточно высоким уровнем активности радиоактивных примесей конструкция н.ф.у. позволяет работать в 2π -геометрии с одним нижним детектором.

4. РАБОЧИЕ ХАРАКТЕРИСТИКИ СПЕКТРОМЕТРА

Для определения рабочих характеристик спектрометра проведены измерения энергетического разрешения и спектра фона верхнего и нижнего комбинированных детекторов как отдельно, так и в состыкованной паре. Энергетическое разрешение спектрометрических кристаллов NaI(Tl) определялось по объемным источникам, содержащим изотопы ^{137}Cs и ^{40}K активностью ~ 200 Бк и помещенным в колодец для проб. Энергетическое разрешение защитных кристаллов CsI(Tl) определялось по внутреннему пику ^{137}Cs . Под внутренним пиком подразумевается пик, обусловленный загрязнением кристаллов CsI(Tl) радиоактивным цезием. Полученные результаты представлены в табл. 1 и 2.

Фон детекторов измерялся внутри пассивной защиты. В табл. 3 приведены значения скорости счета фона состыкованной пары детекторов в энергетических окнах, соответствующих пикам ^{137}Cs , ^{40}K , ^{238}U и ^{232}Th .

В табл. 4 приведены интегральные спектры фона верхнего и нижнего комбинированных де-

Таблица 1. Энергетическое разрешение спектрометрических кристаллов NaI(Tl)

NaI(Tl)	Энергетическое разрешение, %	
	по ^{37}Cs ($E_\gamma = 0.661$ МэВ)	по ^{40}K ($E_\gamma = 1.46$ МэВ)
Верхний детектор	14.1	11.2
Нижний детектор	13.7	9.1
Оба детектора	13.8	10.2

Таблица 2. Энергетическое разрешение защитных кристаллов CsI(Tl)

CsI(Tl)	Энергетическое разрешение, %, по внутреннему пику ^{137}Cs ($E_\gamma = 0.661$ МэВ)
Верхний детектор	18.3
Нижний детектор	15.6
Оба детектора	16.2

Таблица 3. Скорость счета фона состыкованной пары комбинированных детекторов

Энергетические окна, МэВ	Скорость счета, с^{-1} , фона в обоих NaI(Tl)-детекторах
^{137}Cs (0.58–0.74)	0.510
^{40}K (1.36–1.56)	0.123
^{238}U (1.64–1.88)	0.044
^{232}Th (2.50–3.30)	0.045

текторов, измеренные в идентичных условиях в интервале энергий γ -квантов 0.1–3.4 МэВ, и спектр фона регистрирующих кристаллов NaI(Tl) в состыкованной паре детекторов.

С помощью объемного источника из соли KBr с известной активностью определена эффективность регистрации γ -излучения ^{40}K по фотопику. Экспериментальное значение эффективности составило $\epsilon_{\text{эсп}} = 21.3\%$.

Для определения временной стабильности спектрометрического тракта н.ф.у. проведено четыре цикла измерений величины фона, каждый из которых включал тридцать пять экспозиций продолжительностью 819 с. Стабильность контролировалась по внутреннему пику ^{137}Cs в кристалле CsI(Tl) и не превышала 0.5% в течение всех четырех циклов. Измерения показали, что распределение величины фона как в диапазоне энергий γ -квантов 0.1–3.4 МэВ, так и в любом энергетическом интервале внутри этого диапазона подчиняется нормальному закону с дисперсией, равной математическому ожиданию. Таким обра-

Таблица 4. Интегральные спектры фона комбинированных детекторов отдельно и в состыкованной паре, время измерения 3277 с

Энергия, МэВ	Верхний детектор		Нижний детектор		Оба детектора NaI(Tl)
	NaI(Tl)	CsI(Tl)	NaI(Tl)	CsI(Tl)	
0.10–3.40	4275	37388	4742	59730	6731
0.15–3.40	4128	37186	4095	51638	6188
0.20–3.40	3911	36199	3902	39671	5926
0.30–3.40	3542	30937	3583	33391	5523
0.40–3.40	3204	27286	3238	29770	5117
0.50–3.40	2842	24768	2880	26871	4610
0.60–3.40	2486	22313	2493	24350	4083
0.70–3.40	1870	17350	1752	18076	2840
0.80–3.40	1558	14514	1479	14917	2363
0.90–3.40	1376	12644	1316	13450	2098
1.00–3.40	1205	11454	1153	12139	1862
1.50–3.40	376	6622	363	6850	722
2.00–3.40	175	3446	147	3642	316
2.50–3.40	85	1793	70	1806	145

зом, при известном фоне чувствительность спектрометра будет определяться только эффективностью регистрации γ -излучения пробы и временем измерений.

5. ОПРЕДЕЛЕНИЕ КОЛИЧЕСТВЕННОГО СОДЕРЖАНИЯ РАДИОАКТИВНЫХ ИЗОТОПОВ В ИССЛЕДУЕМОЙ ПРОБЕ

Процедура определения содержания изотопов в исследуемой пробе состоит в решении системы линейных уравнений, связывающей экспериментальные значения скорости счета в энергетических окнах, характерных для изотопов, содержание которых в исследуемой пробе мы должны определить, с содержанием этих изотопов:

$$C_i = \sum_j A_{ji} X_j, \quad (1)$$

где C_i , распады/с – скорости счета спектрометра за вычетом фона в i -м энергетическом окне; X_j , распады/с – содержание в исследуемой пробе интересующих нас изотопов; A_{ji} – эффективность регистрации излучения j -го изотопа в i -м энергетическом окне.

Приведенная система уравнений может содержать произвольное число изотопов. При этом для каждого изотопа учитывается как γ -активность в характерном для него энергетическом окне, так и вклад активности других изотопов в это окно. Искомое содержание того или иного изотопа X_j определяется путем решения системы уравнений (1) с использованием экспериментальных величин C_i . Система уравнений (1) записывается с

учетом возможных вкладов j изотопов в i -е энергетическое окно. В коэффициентах A_{ji} учитывается амплитудное разрешение установки.

Количество учитываемых изотопов и вид системы уравнений (1) определяются непосредственно решаемой задачей. Так, например, для определения количества ^{137}Cs в образце в обычных условиях достаточно учесть наличие примесей следующих изотопов: ^{137}Cs , ^{40}K , ^{238}U , ^{232}Th . Пронумеруем их как $j = 1, 2, 3, 4$. Соответственно экспериментально определяем скорости счета спектрометра в энергетических окнах для цезия, калия, урана и тория: 0.58–0.78 МэВ, 1.36–1.56 МэВ, 1.64–1.88 МэВ и 2.50–3.30 МэВ, которые мы также пронумеруем как $i = 1, 2, 3, 4$. В этой ситуации система уравнений (1) будет иметь вид системы из четырех уравнений:

$$\begin{aligned} C_1 &= A_{11}X_1 + A_{21}X_2 + A_{31}X_3 + A_{41}X_4; \\ C_2 &= A_{22}X_2 + A_{32}X_3 + A_{42}X_4; \\ C_3 &= A_{23}X_2 + A_{33}X_3 + A_{43}X_4; \\ C_4 &= A_{34}X_3 + A_{44}X_4. \end{aligned} \quad (2)$$

Решение (2) имеет вид:

$$\begin{aligned} X_1 &= C_1/A_{11} + (A_{31}V_2 - A_{21}V_1 - A_{41}V_3)/(A_{11}D); \\ X_2 &= V_1/D; \\ X_3 &= V_2/D; \\ X_4 &= V_3/D; \end{aligned}$$

$$D = A_{22}(A_{33}A_{44} - A_{43}A_{34}) - A_{23}(A_{32}A_{44} - A_{34}A_{42}); \quad (3)$$

$$V_1 = C_2(A_{33}A_{44} - A_{43}A_{34}) - C_3(A_{32}A_{44} - A_{42}A_{34}) + C_4(A_{32}A_{43} - A_{42}A_{33});$$

$$V_2 = C_3A_{44}A_{22} - C_2A_{44}A_{23} - C_4(A_{22}A_{43} - A_{23}A_{42});$$

$$V_3 = C_2A_{34}A_{23} - C_3A_{34}A_{22} + C_4(A_{22}A_{43} - A_{23}A_{42}).$$

Использование системы уравнений (1) для определения количественного содержания радиоактивного изотопа в исследуемой пробе по его γ -излучению предполагает знание эффективностей регистрации этого излучения A_{ji} , которые зависят от многих факторов. Методически наиболее правильным путем определения эффективности является ее измерение относительно известной активности. Однако экспериментальное решение этой задачи представляет значительную трудность, связанную с использованием большого количества эталонных источников. Поэтому выбран путь математического моделирования эффективности регистрации в широком диапазоне энергий.

Величины A_{ji} вычислялись путем математического моделирования взаимодействия γ -квантов с веществом с использованием метода Монте-Карло. Вычисление коэффициентов A_{ji} осуществлялось с помощью программного пакета GEANT3.21 [2]. Расчетная геометрическая модель была создана с учетом реальной конструкции экспериментальной установки. В модели учитывались кристаллы, проба внутри полости, фотоумножители и пассивная защита. Источники γ -квантов моделировались с помощью генератора DECAU4 [3]. Коэффициенты A_{1i} определялись по результатам моделирования вклада ^{137}Cs , коэффициенты A_{2i} – по результатам моделирования вклада изотопа ^{40}K . Для определения A_{3i} моделировались источники из радиоактивного ряда ^{238}U (^{214}Pb , ^{214}Bi), а для определения A_{4i} – вклад изотопов из ряда ^{232}Th (^{228}Ac , ^{212}Pb , ^{212}Bi и ^{208}Tl). Были исключены радионуклиды ^{206}Tl и ^{210}Tl , образующиеся при разветвлении цепочек распада в крайне незначительных количествах. Все источники разыгрывались в предположении равномерного распределения по объему исследуемого образца. В результате расчетов были получены для каждого изотопа энергетические спектры в кристалле NaI(Tl) с учетом антисовпадений с кристаллом CsI(Tl). В конечных результатах учитывалось амплитудное разрешение каждого кристалла. Стохастическое моделирование проводилось с учетом предположения, что равновесие в радиоактивных рядах урана и тория не нарушено.

Методика математического моделирования протестирована с помощью расчета эффективности регистрации γ -излучения радионуклида ^{40}K ($E_\gamma = 1.46$ МэВ), содержащегося в объемном источнике из соли KBr активностью ~ 200 Бк. Полу-

ченное расчетное значение эффективности $\epsilon_{\text{расч}} = 21.8\%$ в энергетическом окне для калия (1.36–1.56 МэВ) хорошо согласуется с приведенным в предыдущем разделе экспериментальным значением $\epsilon_{\text{эксп}} = 21.3\%$.

Процедура исследования конкретного образца состоит из нескольких этапов. Сначала определяются значения фона с использованием образца, аналогичного исследуемому, но относительно которого известно, что в нем отсутствуют радиоактивные источники. После этого проводятся измерения с самим исследуемым образцом. Из полученных значений числа импульсов в заданных окнах за время измерения (10^4 с) вычитаются соответствующие фоновые величины. Полученные разностные значения подставляются в систему уравнений (1) в качестве значений C_i . Решив систему уравнений, можно определить содержание в образце радиоактивных примесей.

6. ОПРЕДЕЛЕНИЕ ЧУВСТВИТЕЛЬНОСТИ УСТАНОВКИ

Под чувствительностью установки мы понимаем минимально обнаруживаемую активность (*МОА*) для X_j (в нашем примере активности ^{137}Cs , ^{40}K , ^{238}U и ^{232}Th). Для определения *МОА* мы используем методику, развитую в работах [4, 5]. Такой подход принят и широко используется на различных установках и при измерениях (см., например, [6–9]). Минимально обнаруживаемую активность мы определяем по формуле: $MOA = (4.66\sqrt{B})/(t\epsilon\gamma)$ [10], где B – фон в соответствующем энергетическом окне за время измерения, t – живое время, ϵ – эффективность детектора, γ – выход γ -квантов на распад. Так как при вычислении коэффициентов A_{ji} учитываются выходы γ -квантов, то произведение $\epsilon\gamma$ заменяется на диагональные элементы матрицы A .

На основании расчетных данных и результатов измерений рабочих характеристик н.ф.у. получены следующие значения чувствительности установки к γ -излучению радионуклидов ^{137}Cs , ^{40}K , ^{238}U , ^{232}Th в пробах массой ~ 500 г при экспозиции 10^4 с:

$$\sum_{^{137}\text{Cs}} = 8.13 \cdot 10^{-17} \text{ грамм изотопа цезия}$$

на грамм пробы;

$$\sum_{^{40}\text{K}} = 5.88 \cdot 10^{-5} \text{ грамм природного калия}$$

на грамм пробы;

$$\sum_{^{238}\text{U}} = 2.61 \cdot 10^{-8} \text{ грамм урана на грамм пробы;}$$

$$\sum_{^{232}\text{Th}} = 1.62 \cdot 10^{-7} \text{ грамм тория на грамм пробы.}$$

Чувствительность $\sum_{^{40}\text{K}}$ к изотопу ^{40}K вычислена с учетом содержания этого изотопа в природном калии. Таким образом, описанная н.ф.у. по чувствительности более чем на порядок превосходит сцинтилляционные комплексы FoodGuard-1 [10] фирмы ORTEC и не уступает полупроводниковым установкам FoodGuard-2 [11] той же фирмы.

7. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Представленная выше н.ф.у. может быть установлена в обычном лабораторном помещении и обладает характеристиками, мало уступающими характеристикам специализированных полупроводниковых установок. Такие показатели были достигнуты благодаря использованию в спектрометре комбинированных детекторов, позволивших обеспечить повышенную эффективность измерений в сочетании с компактностью активной защиты и тщательно подобранной пассивной защитой. Низкофоновая установка может служить прототипом промышленных образцов установок для радиационного контроля различных проб, включая пробы почвы, пищевой продукции, строительных, конструкционных и других материалов. Габариты и масса установки таковы, что она может быть размещена в кузове грузовой автомашины, что позволяет ее использовать в мобильном варианте.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Дорин А.Б., Ельцин В.Ф., Чураков А.К. "Аналитический обзор российских гамма-спектрометров." ООО НИИП "Грин Стар Инструментс". www.greenstar.ru/articles/obzor_gama_spectrov.pdf
2. GEANT3.21 Detector description and Simulation Tool. Manual. CERN Program Library Long Writeup W5013.
3. Ponkratenko O.A., Tretyak V.I., Zdesenko Yu.G. // Phys. At. Nucl. 2000. V. 63. P. 1282. (nucl-ex 0104018).
4. Currie L.A. // Anal. Chem. 1968. № 40. С. 586.
5. Currie L.A. // Analytica Chimica Acta. 1999. V. 391. P. 127.
6. Xiao-Bin Tang, Jia Meng, Peng Wang, Ye Cao, Xi Huang, Liang-Sheng Wen, Da Chen // Applied Radiation and Isotopes. 2016. V. 110. P. 100.
7. Anicin I.V., Yap C.T. // Nucl. Instrum. and Methods in Phys. Res. 1987. V. A259. P. 525.
8. Bagatelas C., Tsabaris C., Kokkoris M., Papadopoulos C.T., Vlastou R. // Environ Monit Assess. 2010. V. 165. P. 159.
9. Runkle R.C., Smith L.E., Peurrung A.J. // Journal of Applied Physics. 2009. V. 106. P. 041101.
10. <http://www.ortec-online.com/products/radiochemistry-health-physics-research-industrial/food-monitoring-systems/foodguard-1>
11. <http://www.ortec-online.com/products/radiochemistry-health-physics-research-industrial/food-monitoring-systems/foodguard-2>