

Изобретение относится к области радиометрии гамма-излучения и может быть использовано при радиационном санитарно-гигиеническом и технологическом контроле альфа-излучающих трансурановых радионуклидов, в том числе при контроле степени загрязнения америцием-241 почвы, воды, продуктов питания, сельскохозяйственного сырья и т.п.

В настоящее время проблема контроля альфа-излучающих трансурановых радионуклидов в среде обитания привлекает особое внимание, поскольку с ними связан долговременный риск для здоровья людей вследствие их внутреннего облучения при миграции таких радионуклидов по пищевым цепочкам.

Радиологическое воздействие в зоне Чернобыльской катастрофы оказывают, в основном, альфа-излучающие изотопы плутония-238, -239, -240 и генетически связанный с ними америций-241 ($E_\alpha \sim 5,1 - 5,5 \text{ МэВ}$) (Основы сельскохозяйственной радиологии / Б.С. Пристер, Н.А. Лошилов, О.Ф. Немец, В.А. Поярков. - К.: Урожай, 1991. - 472с. - 347с.). Последний занимает особое место, поскольку он образуется в результате бета-распада ($E_{\beta_{\max}} = 21 \text{ кэВ}$) большого количества (0,14 Мега Кюри) плутония-241, который дает ~9,8% общей активности смеси изотопов реакторного плутония, выброшенного в среду обитания. Из-за сравнительно короткого времени полураспада плутония-241 ($T_{1/2} = 13,2$ года) количество америция-241 в среде обитания будет возрастать вплоть до 2060 года и лишь затем медленно ($T_{1/2} = 433$ года) уменьшаться. В настоящее время около 40% суммарной активности альфа-излучающих радионуклидов обусловлено америцием-241, а к 2000 году она составит уже 50% (Сухоручкин А. Америций-241: ничего неожиданного? // Вестник Чернобыля. - 1994. - №1 (520)).

Кроме того, возможно, измерив активность в пробе (грунта, воды, пищевых продуктов или сельскохозяйственного сырья и т.п.) америция-241 по известному (из расчетов или калибровочного радиохимического анализа) соотношению, определить активность и остальных трансуранов, т.е. решить проблему контроля альфа-излучающих радионуклидов полностью. Поэтому задача оперативного контроля америция-241 в среде обитания является весьма актуальной.

Возможны два основных метода радиационного контроля активности альфа-излучающих трансурановых радионуклидов - по спектрам альфа- и сопутствующего ему гамма-излучения, исходящего из пробы. Контроль (радиометрия) по альфа-излучению, как правило, требует предварительного концентрирования (осаждения на специальную подложку) этих радионуклидов радиохимическим методом с последующей обработкой альфа-спектра на спектрометре-радиометре. Радиохимический анализ одной, пробы занимает от 2 до 7 дней, его стоимость - десятки миллионов карбованцев, т.е. этот метод дорогостоящий и неоперативный. При этом используется громоздкая установка с полупроводниковым детектором (ППД) альфа-излучения, требующим криогенного охлаждения (Устройство спектрометрическое СЭА-01.ЖШ 1.287.813 Т01. Техническое описание и инструкция по эксплуатации).

Для контроля активности по гамма-излучению

применение радиохимического метода в принципе не обязательно. Но энергия гамма-квантов, излучаемых трансуранами (кроме америция-241), лежит, в основном, в диапазоне 10 - 30 кэВ, а их квантовый выход менее 1%. Эти аспекты затрудняют контроль большинства трансуранов из-за трудности регистрации такого излучения наиболее распространенными и эффективными сцинтилляционными детекторами, не требующими криогенного охлаждения. Поэтому радиационный контроль трансурановых радионуклидов наиболее целесообразно вести по америцию-241.

Измерение активности америция-241, в принципе, можно вести как по альфа-излучению ($E_\alpha = 5,1 - 5,5 \text{ МэВ}$), так и по гамма-излучению ($E_{\gamma_1} = 59,5 \text{ кэВ}$, $E_{\gamma_2} = 26,4 \text{ кэВ}$, $E_x = 17 \text{ кэВ}$).

Однако альфа-частицы сильно поглощаются в среде (даже в воздухе длина их пробега 3 - 5 см, а в грунте - до 50 мкм). Вследствие такого самопоглощения их регистрация из толстослойных источников проб без радиохимического выделения радионуклида малоэффективна, и метрология таких измерений затруднена. Гамма-линия $E_{\gamma_2} = 26,4 \text{ кэВ}$ имеет низкий квантовый выход, гамма- и рентгеновские кванты с энергией 26,4 и 1,7 кэВ также сравнительно сильно поглощаются в среде. Поэтому наиболее рационально для измерения активности Am-241 использовать регистрацию гамма-излучения с энергией квантов 59,5 кэВ и приборы на базе сцинтилляционных блоков детектирования.

Измерение активности возможно осуществлять сравнивая площади фотопика (количество зарегистрированных гамма-квантов в окне этой гамма-линии за время экспозиции) для испытываемого и образцового источника с известной активностью за вычетом фона (Основы сельскохозяйственной радиологии / Б.С. Пристер и др. - С.165 - 167). Этот способ измерения активности реализуется в гамма-радиометре РУГ-91 для радионуклидов Cs-137 - 134 и K-40 (Гамма-радиометр РУГ-91 "Адани". Руководство пользователя, 1991).

Для этих радионуклидов такой способ измерения оправдан, так как для их соответствующих фотопиков влияние помех от непрерывного распределения (комптоновской части спектра регистрируемых сцинтилляционным детектором гамма-квантов с более высокой, чем у Cs-137 или K-40, энергией) невелико.

Применение же этого способа для контроля америция-241 требует присутствия в пробе только этого радионуклида (т.е. выделения его радиохимическим методом - см. выше), иначе помехи от непрерывного распределения и соответственно погрешность измерения будут весьма велики.

Наибольший вклад в этот сигнал помехи по гамма-излучению в настоящее время вносит цезий-137 (период полураспада $T_{1/2} = 30$ лет, суммарная активность выброса в среду обитания ~1 Мега Кюри. Вклад остальных техногенных радионуклидов вследствие либо сравнительно короткого времени жизни (подавляющее большинство их уже распались), либо малой начальной активности, в настоящее время составляет не более 5% (Сухоручкин А. Америций-241: ничего неожиданного? // Вестник Чернобыля. - 1994. - №1 (520)). Причем величина удельной активности Cs-137 в пробах (грунта и т.п.) во

многих случаях может превышать активность Am-241 в ~10000 раз, что приводит к тому, что сигнал помехи в окне Am-241 может во много раз превосходить сигнал от самого Am-241.

Наиболее близким по технической сущности и выбранным в качестве прототипа является способ определения удельной активности в пробе с помощью сцинтилляционного детектора по спектру гамма-излучения радионуклидов (Основы сельскохозяйственной радиологии / Б.С. Пристер и др. - К.: Урожай, 1991. - С.162 - 179). Он включает регистрацию гамма-квантов детектором, анализ (получение амплитудного спектра с помощью спектрометра-радиометра) и селекцию электрических импульсов детектора по амплитуде (формирование окон - интервала амплитуд импульсов - с помощью дифференциального дискриминатора), измерение средней скорости счета импульсов в окнах фотопика какой-либо гамма-линии искомого радионуклида (например, америция-241 или цезия-137 и т.п.) и непрерывного распределения по обе стороны этого фотопика в присутствии пробы и без нее (измерение фона), определение помехи от сопутствующих искомому радионуклиду в пробе радионуклидов ("пьедала" под фотопиком) как средней величины уровня непрерывного распределения по обе стороны фотопика с учетом разности средних скоростей счета с последующим определением удельной активности искомого радионуклида по выражению

$$A = \frac{(n_n - n_{n\phi}) - 0,5[(n_1 - n_{1\phi}) + (n_2 - n_{2\phi})]}{km}$$

где A - удельная активность америция-241, Бк/кг;

n_n - средняя скорость счета в окне фотопика в присутствии измеряемой пробы, c^{-1} ;

$n_{n\phi}$ - средняя скорость счета в окне фотопика в отсутствии пробы, c^{-1} ;

n_1 и n_2 - средние скорости счета в окнах фотопика соответственно слева и справа от него в присутствии пробы, c^{-1} ;

$n_{1\phi}$ и $n_{2\phi}$ - средние скорости счета в окнах вне фотопика соответственно слева и справа от него в отсутствии пробы, c^{-1} ;

k - чувствительность радиометра, Бк $^{-1}$, c^{-1} ;

m - масса пробы, кг;

$$n_i = \frac{N_i}{t_i} -$$

число импульсов, зарегистрированных в i-м окне за время экспозиции t_i).

Способ иллюстрируется типичным гамма-спектром на фиг.1.

Данный способ дает хорошие результаты в случаях сравнительно низкой активности сопутствующих искомому радионуклидов, либо отсутствия близкорасположенных гамма-линий и перекрытия их фотопиков с фотопиком, по которому измеряется активность искомого радионуклида. В противном случае погрешность измерения возрастает и тем сильнее, чем выше относительная активность сопутствующих в пробе радионуклидов с перекрывающимися фотопиками.

При применении этого способа для измерения удельной активности америция-241 с помощью сцинтилляционного детектора, когда в грунте активность цезия-137 может превосходить активность америция-241 в ~10000 раз, величина сигнала помехи в несколько раз превосходит полезный сигнал (т.е. $n_n - 0,5(n_1 + n_2) \ll 0,5(n_1 +$

$n_2)$). Кроме того, самую существенную помеху измерениям активности Am-241 по этому способу (по гамма-линии 59,5кэВ) представляет рентгеновская линия ($E_x = 33кэВ$) Cs-137, фотопик которой (вследствие ограниченного разрешения сцинтилляционного детектора в области этих энергий) частично перекрывается с фотопиком 59,5кэВ (фиг.2). Теоретическое вычисление вклада этой помехи довольно сложно и является длительным многоступенчатым процессом (Сельскохозяйственная радиология / Б.С. Пристер и др. - С.167 - 169; Koskelo M.I., Aarnu P.A., Ruetti J.T., Sampo-80: An accurate gamma spectrum analysis method for minicomputer. Nuclear instruments and methods, 1981. V.190. - №1. - P.89 - 99) и не может быть реализовано в реальном времени в полевых условиях.

В итоге реализация способа по прототипу для измерения активности америция-241 в пробах в каждом отдельном случае весьма осложнена, требует много времени, промежуточных расчетов и дает очень большую погрешность. Таким образом, измерить относительно небольшие удельные активности америция-241 (но близкие к предельно допустимым из-за его существенной радиобиологической значимости как альфа-излучателя) с помощью способа по прототипу в реальной радиационной обстановке в полевых условиях в течение приемлемого времени не представляется возможным.

В основу изобретения поставлена задача разработать способ определения удельной активности америция-241 в пробах по его гамма-излучению, который обеспечил бы измерение малых активностей на фоне высоких активностей сопутствующих радионуклидов (прежде всего цезия-137).

Решение поставленной задачи обеспечивается тем, что в способе определения удельной активности америция-241, включающем регистрацию гамма-квантов детектором, анализ и селекцию электрических импульсов детектора по амплитуде, измерение средней скорости счета импульсов в окнах фотопика гамма-излучения америция-241 с энергией квантов 59,5кэВ и непрерывного распределения в присутствии пробы и без нее, определение помехи от сопутствующих америция-241 в пробах радионуклидов по этим измерениям с учетом разности средних скоростей счета в этих окнах с последующим определением удельной активности, согласно изобретению, помеху определяют по измерениям в окне непрерывного распределения, смещенном от фотопика америция-241 в сторону высоких энергий с учетом формы спектра этого распределения от сопутствующих радионуклидов в окне фотопика америция-241, а удельную активность определяют по выражению

$$A = \frac{[(n_n - n_{n\phi}) - q(n_n - n_{n\phi})]}{km}, \quad (2)$$

где A - удельная активность америция-241, Бк/кг;

n_n - средняя скорость счета в окне фотопика Am-241 в присутствии измеряемой пробы, c^{-1} ;

$n_{n\phi}$ - средняя скорость счета в окне фотопика в отсутствие пробы, c^{-1} ;

n_n - средняя скорость счета в окне непрерывного распределения в присутствии пробы, c^{-1} ;

$n_{n\phi}$ - средняя скорость счета в окне непрерывного распределения в отсутствие пробы,

с^{-1} ;

q - коэффициент формы спектра непрерывного распределения от сопутствующих радионуклидов в окне фотопика Am-241 ;

k - чувствительность спектрометра-радиометра, $\text{Бк}^{-1} \cdot \text{с}^{-1}$;

m - масса пробы, кг.

Выбор гамма-линии америция-241 с энергией квантов $59,5 \text{кэВ}$ для измерения удельной активности в пробах обусловлен сравнительно слабым поглощением в среде пробы (по сравнению с излучаемыми им альфа-частицами или квантами с $E_\gamma = 26,4 \text{кэВ}$ и $E_\alpha = 16,7 \text{кэВ}$), существенным квантовым выходом на распад (35,3%). Это обеспечивает оптимальную регистрацию гамма-излучения Am-241 детектором, в частности, на основе монокристалла GSO.

Выбор окна диапазона селекции электрических импульсов детектора по амплитуде для измерения помехи от непрерывного распределения (комптоновской части спектра) сопутствующих америцию-241 в пробе радионуклидов (в основном это цезий-137) со смещением от фотопика с $E_\gamma = 59,5 \text{кэВ}$ в сторону высоких энергий обусловлен тем, что в этой области отсутствуют фотопики (поскольку наиболее распространенные в настоящее время в зоне, прилегающей к ЧАЭС, техногенные и природные радионуклиды не имеют гамма-линий с существенным квантовым выходом и интенсивностью в области $60 - 110 \text{кэВ}$).

По этим измерениям возможно определение полной помехи от сопутствующих радионуклидов в окне Am-241 , т.е. вклад в "пьедал" фотопика $59,5 \text{кэВ}$ как непрерывного распределения, так и перекрытия с этим фотопиком фотопика 33кэВ Cs-137 . Это реализуется благодаря тому, что форма гамма-спектра Cs-137 для любой выбранной конструкции детектора не зависит от активности этого радионуклида. Уровень непрерывного распределения жестко связан с величиной фотопика 33кэВ и прямо пропорционален ему. Поэтому полностью вклад помехи в среднюю скорость счета в окне Am-241 определяют с помощью этого коэффициента пропорциональности (формы спектра) q с учетом фона, т.е. $P_{\text{помехи}} = q(n_n P_{\text{нф}})$.

Величины коэффициента формы спектра q и чувствительности радиометра k определяют калибровкой (например, при заводской настройке прибора) по измерениям образцовых проб с известной (измеренной другими способами) активностью. Массу m пробы определяют взвешиванием, среднюю скорость счета в соответствующем i -м окне n_i определяют как $n_i = N_i/t_i$, где N_i - количество, импульсов, зарегистрированных в i -м канале за время экспозиции t_i .

Заявляемый способ включает а себя следующие комплексные операции:

1. Регистрация фоновых гамма-квантов детектором, анализ и селекция электрических импульсов детектора по амплитуде в окне фотопика Am-241 , их счет в течение времени экспозиции и определение средней скорости счета в окне фотопика без пробы ($n_{\text{нф}}$)-измерение фона в окне фотопика;

2. Регистрация фоновых гамма-квантов детектором, анализ и селекция электрических импульсов детектора по амплитуде в окне непрерывного распределения (смещенном от окна

фотопика в сторону высоких энергий), их счет в течение времени экспозиции и определение средней скорости счета в окне непрерывного распределения без пробы ($n_{\text{нф}}$)-измерение фона в окне непрерывного распределения;

3. Помещение пробы в измерительную кювету детектора блока детектирования радиометра. (При осуществлении операции 2 для радиометра в микроЭВМ вводится масса пробы m и - при необходимости - величины q и k , что, в принципе, может быть выполнено при выполнении операции 6);

4. Регистрация гамма-квантов (испускаемых пробой и фоновых) детектором, анализ и селекция электрических импульсов детектора по амплитуде в окне непрерывного распределения, их счет в течение времени экспозиции, определение средней скорости счета в окне непрерывного распределения в присутствии пробы (n_n)-измерение уровня помех от сопутствующих Am-241 радионуклидов;

5. Регистрация гамма-квантов (испускаемых пробой и фоновых) детектором, анализ и селекция электрических импульсов детектора по амплитуде в окне фотопика Am-241 , их счет в течение времени экспозиции и определение средней скорости счета в окне фотопика в присутствии пробы (n_n)-измерение суммарного сигнала от пробы;

6. Определение по результатам измерений с учетом параметров q , k и m вклада помех в окне Am-241 и величины удельной активности америция-241 в пробе по выражению (2).

Для реализации заявляемого способа нами был разработан и испытан спектрометр-радиометр (условное обозначение РК-АГ) - фиг.3. Он состоит из блоков детектирования 1 и обработки данных 2 - фиг. 4. Блок детектирования 1 (детектор) включает съемную измерительную кювету 3 для проб, сцинтиллятор 4 на основе монокристалла силиката гадолиния GSO, фотоэлектронный умножитель 5 ФЭУ-176, спектрометрический усилитель-формирователь 6, четыре дискриминатора 7, а также пассивную защиту 8 (стакан из нержавеющей стали).

Блок обработки данных включает в себя микроЭВМ 9 (микропроцессор) с постоянной 10 и оперативной 11 памятью коммутатор измерительных каналов 12, клавиатуру 13 для введения в микроЭВМ параметров q , k , m и управления режимами работы радиометра, индикатор жидкокристаллический 14 (ЖКИ) для визуализации данных измерения на каждой операции и итоговых результатов определения удельной активности америция-241 в пробе, интерфейс 15 для связи с ПЭВМ (может использоваться при настройке и калибровке прибора).

Для этого радиометра величина $q = 1,42$; для проб грунта $k = 5,830 \text{Бк}^{-1} \cdot \text{с}^{-1}$, масса пробы в пределах $50 - 100 \text{г}$.

Пример осуществления способа.

Включают радиометр без пробы. После прохождения тестовой программы индикации готовности его к работе регистрируют с помощью детектора GSO фоновое гамма-излучение, селекцию электрических импульсов детектора по амплитуде осуществляют в окне Am-241 в диапазоне амплитуд импульсов, соответствующих фотопику детектора для гамма-квантов с энергией

59,5кэВ - в интервале 40 - 80кэВ) с их счетом ($N_{пф}$) в течение времени экспозиции $t_{пф}$, определяют среднюю фоновую скорость счета в пике $n_{пф} = N_0/t_{пф}$, где $N_0 = 10000$ для всех операций счета - комплексная операция 1.

Затем, аналогично регистрируя фоновое гамма-излучение детектором, селекцию и счет электрических импульсов детектора ведут в окне непрерывного распределения справа от фотопика Am-241 (фиг.2) в интервале 80 - 120кэВ, определяют среднюю фоновую скорость счета в области непрерывного распределения спектра сопутствующих Am-241 в пробе радионуклидов $n_{пф} = N_0/t_{пф}$ - комплексная операция 2.

Гомогенизированную (путем измельчения и перемешивания) пробу грунта (воды, молока, масла, зерна и т.п.) засыпают доверху в измерительную кювету и закрывают крышкой. Кювету взвешивают и подсоединяют к детектору. В микроЭВМ с помощью клавиатуры последовательно вводят величину коэффициента формы спектра q , чувствительности радиометра k для данного вида пробы и массу пробы m . При выполнении серий измерений проб могут быть введены также величины $n_{пф}$ и $n_{пф}$, полученные перед измерением первой пробы (для сокращения потерь времени на повторное измерение фона) - комплексная операция 3.

Регистрируя гамма-излучение пробы (фоновое излучение) детектором, селекцию и счет импульсов детектора проводят в окне непрерывного распределения в интервале энергий 80 - 120кэВ, определяют среднюю скорость счета $n_n = N_0/t_n$ - комплексная операция 4.

Регистрируя гамма-излучение пробы (+ фоновое излучение) детектором, селекцию и счет импульсов детектора проводят в окне фотопика Am-241 в интервале энергий 40 - 80кэВ, определяют среднюю скорость счета $n_n = N_0/t_n$ - комплексная операция 5.

Проводят обработку результатов измерений с помощью МИКРО ЭВМ: определяют помеху от сопутствующих Am-241 в пробе радионуклидов и в конечном счете удельную активность америция-241 в пробе по выражению

$$A = \frac{[(n_n - n_{пф}) - q(n_n - n_{пф})]}{km},$$

- комплексная операция 6.

Далее считывают результат измерения удельной активности Am-241 в пробе A в цифровом виде с ЖКИ и заносят его в лабораторный журнал (см. также таблицу с фактическими данными по серии измеренных проб).

Проведены практические испытания спектрометра-радиометра РК-АГ, реализующего данный способ. В таблице приведены результаты измерений активности Am-241 в различных пробах с помощью этого прибора по заявляемому способу и с помощью спектрометра фирмы ORTEC на основе γ -ППД с криогенным охлаждением по прототипу.

Время измерения фона $t_{пф}$, $t_{пф}$ при $N = 10000$ составляет ~2 часов для нашего прибора. Время измерения удельной активности A с помощью радиометра РК-АГ (за вычетом времени измерения фона) для малых удельных активностей Am-241 (~2 - 5Бк/кг) составляет ~60мин, для средних ~50 - 100Бк/кг - 10мин.

Время же измерения по прототипу с помощью

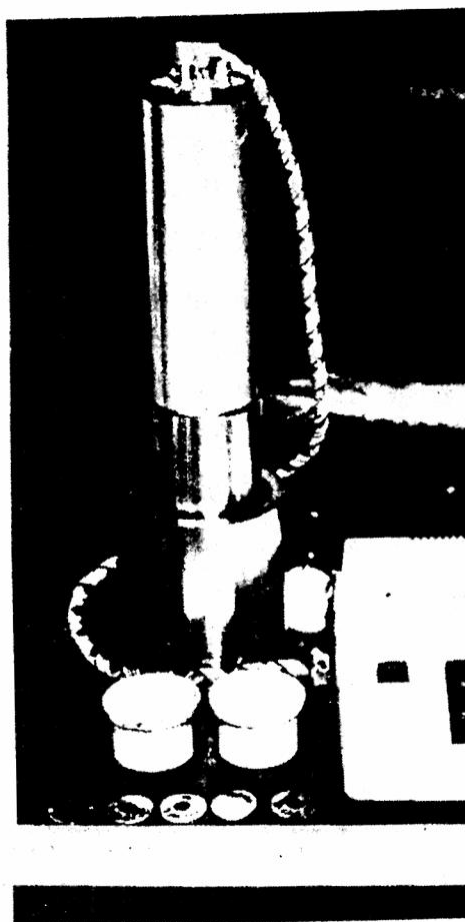
ПЛД спектрометра ORTEC с высоким энергетическим разрешением одной пробы (за вычетом времени измерения фона) составляет для малых удельных активностей ~12 часов, т.е. значительно дольше, чем в нашем случае.

Как видно из таблицы, активность Cs-137 может превосходить активность Am-241 в $\sim 10^4$ раз. При этом с помощью заявляемого способа уверенно обеспечивается оперативное измерение активностей америция-241 3Бк/кг.

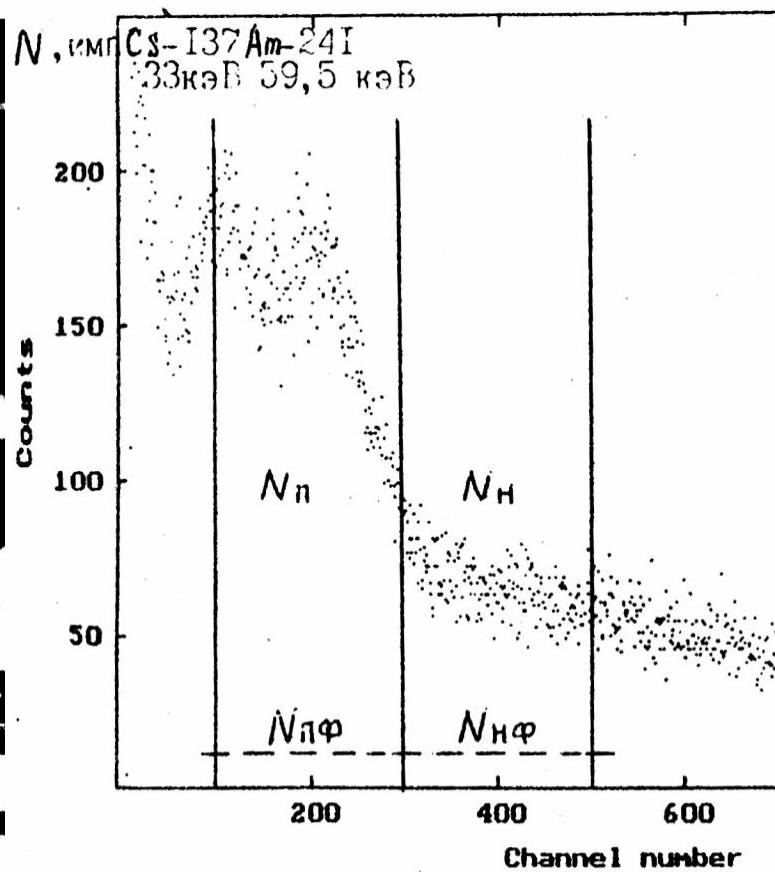
Отсюда очевидны простота, точность и надежность экспрессных измерений с помощью заявляемого способа. Спектрометр-радиометр РК-АГ (фиг.3) работает как в лабораторных, так и в полевых условиях а отличие от спектрометров с ППД типа СЭА-01 или ORTEC, которые требуют лабораторных условий, криогенного охлаждения, сложных манипуляций с пробами и продолжительного времени измерений.

Результаты испытаний заявляемого

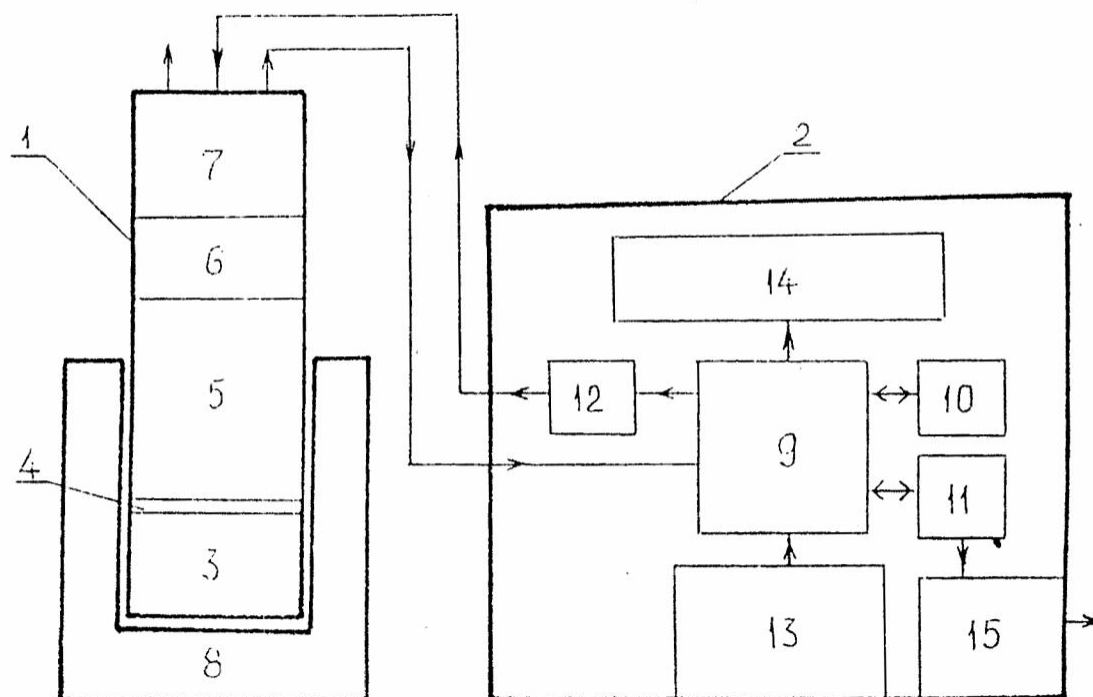
№ пробы	Масса пробы, г	Средняя скорость счета в соответствующих режимах, с ⁻¹				Удельная активность Am-241 измеренная заявляемым способом Бк/кг
		n_n	$n_{пф}$	n_n	$n_{пф}$	
46	81,3	7.33	1,47	4,79	1,57	2,7
61	64,0	9.30	1,47	5,56	1,57	5,7
Пі	77,1	16,45	1,47	9,07	1,57	9,6



Фиг. 1



Фиг. 3



Фиг. 2