

3. Боровкова Л.Б., Бородин Т.И., Вальяно Г.Е. и др. Совершенствование состава и исследование характеристик модифицированного диоксидциркониевого бетона гидратационного твердения для высокотемпературной футеровки. — Огнеупоры, 1991, № 3, с. 8—11.
4. Немец И.И., Бельмаз Н.С., Семькина Л.Н. и др. Шихта для изготовления безобжиговых изделий высшей огнеупорности. А.с. 1766881 СССР. — Открытия. Изобретения, 1991, № 39, с. 91.
5. Семькина Л.Н. Диоксидциркониевые бетоны на основе механохимических фосфорсодержащих вяжущих. Авторефер. дис. на соискание ученой степ. канд. техн. наук. Белгород, Академия строит. материалов, 1996.
6. Акопов Ф.А., Вальяно Г.Е., Минеев В.Н. и др. Термостойкость элементов покрытия ловушки из диоксидциркониевой керамики при тяжелой аварии. — Атомная энергия, 1999, т. 87, вып. 2, с. 140—144.
7. Акопов Ф.А., Акопян А.А., Барыкин Б.М. и др. Поведение диоксидциркониевой керамики в условиях работы внешней ловушки. — Там же, 1999, т. 87, вып. 1, с. 48—53.

Поступила в Редакцию 29.11.99

УДК 539.074.4

ПРЯМЫЕ ИЗМЕРЕНИЯ МАЛОЙ АКТИВНОСТИ ^{90}Sr В ВОДЕ ПО ЧЕРЕНКОВСКОМУ ИЗЛУЧЕНИЮ

Черняев А.М., Гапонов И.А. (РНЦ «Курчатовский ин-т»)

Сложность измерения прямым методом низкого уровня объемной активности ^{90}Sr в пробах воды обусловлена в первую очередь малым пробегом (< 2 мм) испускаемых β -частиц. Поэтому для измерения ^{90}Sr обычно используют детекторы на основе проточных газоразрядных счетчиков или пленочных сцинтилляторов с большой площадью чувствительной поверхности [1]. Порог чувствительности этих детекторов позволяет измерять активность на уровне 2—4 Бк/л. Наиболее существенное отличие рассматриваемого метода от традиционных способов состоит в том, что для регистрации ^{90}Sr не требуется первичный преобразователь. Энергия β -частицы преобразуется в световую вспышку непосредственно в исследуемой пробе воды за счет эффекта Вавилова—Черенкова. В качестве детектора черенковского излучения используется фотоэлектронный умножитель. При этом пробег фотона в воде во много раз превосходит пробег β -частицы. В результате этого возможность измерения низкого уровня активности ^{90}Sr может быть обеспечена за счет как применения детектора с большой площадью чувствительной поверхности, так и увеличения объема пробы.

Следует отметить, что собственное β -излучение ^{90}Sr трудно регистрировать по черенковскому излучению из-за его относительно низкой граничной энергии (0,546 МэВ) β -частиц. Однако ^{90}Y , короткоживущий дочерний продукт распада ^{90}Sr , характеризуется высокой энергией β -частиц и может быть зарегистрирован по черенковскому излучению [2].

Расчетно-экспериментальному обоснованию методики измерения объемной активности ^{90}Sr — ^{90}Y в пробах воды по черенковскому излучению и посвящена настоящая работа.

Черенковское излучение и чувствительность фотоумножителя. Известно [3], что прохождение быстрой заряженной частицы в прозрачной диэлектрической среде может сопровождаться излучением Вавилова—Черенкова. Условием возникновения черенковского излучения является превышение скорости заряженной частицы фазовой скорости света в рассматриваемой среде

$$n\beta > 1, \quad (1)$$

где n — средний показатель преломления среды; $\beta = v/c$ — скорость заряженной частицы в единицах скорости света в вакууме.

Излучение направлено по образующим конуса с углом раствора θ , ось которого совпадает с траекторией частицы. Условие излучения (или условие когерентности) записывается в виде $\cos \theta = (\beta n)^{-1}$. В частности, для воды средний показатель преломления равен 1,33, и условие (1) выполняется при $\beta \geq 0,75$. Таким образом, для электронов пороговая энергия возникновения черенковского излучения в воде равна 0,25 МэВ.

Число испущенных электроном фотонов на отрезке пути Δl в интервале длины волны $\lambda_1 - \lambda_2$

$$N = 2\pi\alpha \left(\frac{1}{\lambda_2} - \frac{1}{\lambda_1} \right) \left(1 - \frac{1}{\beta^2 n^2} \right) \Delta l, \quad (2)$$

где α — постоянная тонкой структуры ($\alpha = 1/137$).

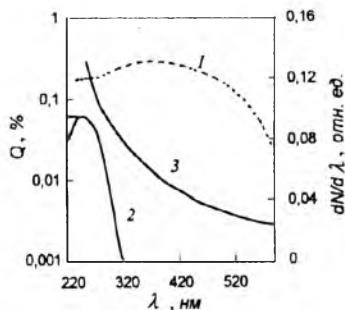
С учетом формулы (2) рассчитан выход фотонов для естественных и техногенных радионуклидов в водной среде. Процессы генерации и распространения в воде β -частиц и вторичных электронов, образующихся при распаде нуклидов и вызывающих черенковское излучение, моделировали методом Монте-Карло по модифицированной версии программы ФОБОС [4]. В модифицированной версии программы ФОБОС для построения траектории электрона используется метод укрупненных столкновений [5]. При этом выход фотонов, возникающих при движении вторичных электронов и β -частиц, рассчитывается по формуле (2) для каждого элементарного отрезка Δl между двумя узловыми точками траектории. Необходимые для расчетов исходные данные о спектре β -излучения нуклидов заимствованы из справочника [6].

Данные табл. 1 показывают, что в среднем на один распад дочернего ^{90}Y испускается 170 фотонов, что примерно в 100 раз меньше выхода световых фотонов при вспышке в органическом сцинтилляторе. В результате амплитуда полезных импульсов на выходе фотоумножителя оказывается сравнимой с амплитудой темновых импульсов. В связи с этим для выделения фотонов на фоне темновых импульсов необходимо использовать фотоумножители с большим квантовым выходом фотокатода и низким темновым током. Максимальным квантовым выходом Q 30% [7] обладают фотоумножители с калий-цезий-сурьмяным фотокатодом, спектральная характеристика (рис. 1) располагается в диапазоне длины волны 160—650 нм. Однако фотоумножители с таким фотокатодом имеют высокий уровень собственных шумов. Скорость счета темновых импульсов колеблется от 300 до 1000 имп./с. Для снижения уровня шумов в черенковских детекторах, как правило, применяют два включенных на совпадение фотоумножителя [8] с охлаждением [9].

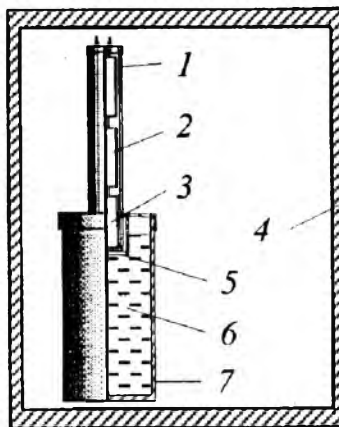
Т а б л и ц а 1. Выход фотонов в диапазоне длины волн 220—600 нм в водной среде

Нуклид	$T_{1/2}$	E_γ , МэВ	n_γ , %	E_β , МэВ	n_β , %	n , фотон черенковского излучения на распад
$^{90}\text{Sr} - ^{90}\text{Y}$	329,2 года (64 ч)	—	—	2,279	100	170
^{40}K	$1,26 \cdot 10^9$ года	1,461	10,7	1,311	89,3	60
$^{137}\text{Cs} - ^{137}\text{Ba}$	30,2 года (2,5 мин)	0,661	85,1	0,511 1,173	94,4 5,6	8

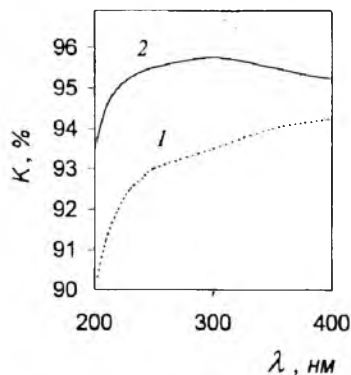
Исследования показали, что для регистрации черенковского излучения в наибольшей степени подходят фотоумножители с теллурорубидиевым фотокатодом, спектральная чувствительность которого также показана на рис. 1. В первую очередь это



Р и с. 1. Спектральные характеристики калий-цезий-сурьмяного (1), теллурорубидиевого фотокатода (2) и черенковского излучения (3)



Р и с. 2. Схема измерительной установки: 1 — детектор; 2 — электронные модули; 3 — ФЭУ; 4 — защита; 5 — кварцевое стекло; 6 — раствор; 7 — емкость



Р и с. 3. Коэффициенты пропускания входных окон (толщиной 2 мм) из кварца (1) и MgF_2 (2)

обусловлено предельно малым уровнем (менее 1 имп./с) собственных шумов. Оценки показывают, что, несмотря на низкую квантовую эффективность (6—10%), отношение сигнал—шум таких фотокатодов по крайней мере в 3,5 раза выше, чем фотоумножителей с калий-цезий-сурьмяным фотокатодом.

Экспериментальная установка. Лабораторный макет установки для измерения объемной активности ^{90}Sr — ^{90}Y в пробах воды по черенковскому излучению показан на рис. 2. Основными элементами являются детектор черенковского излучения и измерительная кювета. В детекторе применен ФЭУ-170 с полупрозрачным теллурорубидиевым фотокатодом на входном окне из фтористого магния. Спектральная чувствительность фотокатода на длине волны 250 нм составляет 11 мА/Вт. Диаметр рабочей площади фотокатода равен 25 мм. Измерительная кювета цилиндрической формы изготовлена из титана и снабжена кварцевым окном, через которое фотоумножитель регистрирует черенковское излучение из пробы. Коэффициенты пропускания для кварцевого окна и окна из фтористого магния представлены на рис. 3. Для снижения вклада внешнего проникающего излучения в фон установки детектор и измерительная кювета размещены в стальной камере с толщиной стен 200 мм из радиационно-чистого материала с внутренним свободным пространством размером $2 \times 2 \times 2$ м. В качестве регистрирующего устройства использовали многоканальный анализатор импульсов «Nokia» LP4900B.

Результаты измерений. Целью измерений являлось определение чувствительности установки к объемной активности водных растворов ^{90}Sr — ^{90}Y , ^{40}K и ^{137}Cs — ^{137}Ba , а также оценка минимально измеряемой активности ^{90}Sr — ^{90}Y в зависимости от объема пробы. Для этого в эксперименте использовали кюветы объемом 0,84 и 4,7 л, которые были заполнены стандартным раствором радионуклидов в дистиллированной воде. При этом активность раствора ^{137}Cs составляла 2300 Бк/л, ^{40}K — 370 Бк/л. Активность ^{90}Sr — ^{90}Y в кюветах объемом 0,84 и 4,7 л была разной: 1480 и 460 Бк/л соответственно. Для определения фона установки применяли кюветы с дистиллированной водой.

В процессе измерения регистрировали как амплитудное распределение импульсов черенковского излучения в пробах, так и интегральный счет. Типичное время измерения составляло 1000 с. Сравнение показало, что амплитудное распределение растворов различных нуклидов имеет примерно одинаковую форму, которая близка к квазипуассоновскому распределению и не зависит от граничной энергии β -частиц.

В результате анализа большого числа экспериментальных данных установлено, что фон установки в пределах погрешности не зависит от объема пробы и определяется темновыми импульсами фотоумножителя. Его среднее значение составило $0,18 \pm \pm 0,017$ имп./с.

Чувствительность, которую определяли как отношение средней скорости счета установки за вычетом скорости счета фоновых импульсов к объемной активности стандартного раствора, представлена в табл. 2. Там же для сравнения приведены расчетные оценки предельной чувствительности, характерной для проб воды бесконечного объема (для светового фотона с $\lambda = 250$ нм объем дистиллированной воды более 1 м^3 эквивалентен бесконечному).

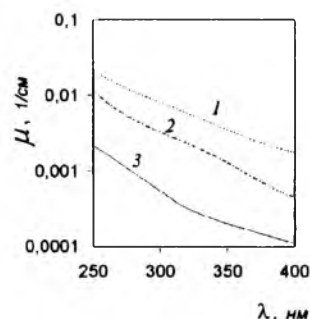
Т а б л и ц а 2. Чувствительность установки для растворов разного объема, имп. $\cdot \text{с}^{-1} \cdot \text{Бк}^{-1} \cdot \text{л}^{-1}$

Объем, л	$^{90}\text{Sr}—^{90}\text{Y}$	^{40}K	$^{137}\text{Cs}—^{137}\text{Ba}$
0,84	$2,7 \cdot 10^{-3}$	$8,3 \cdot 10^{-4}$	$1,0 \cdot 10^{-4}$
4,70	$6,5 \cdot 10^{-3}$	$1,8 \cdot 10^{-3}$	$2,5 \cdot 10^{-4}$
Бесконечный	$8,0 \cdot 10^{-2}$	$2,3 \cdot 10^{-2}$	$3,3 \cdot 10^{-3}$

Из данных табл. 2 следует, что чувствительность установки к $^{137}\text{Cs}—^{137}\text{Ba}$ составляет всего лишь 4—5% чувствительности к $^{90}\text{Sr}—^{90}\text{Y}$. Это означает, что при сопоставимой концентрации ^{90}Sr и ^{137}Cs в пробе вклад последнего в объемную активность ^{90}Sr можно не учитывать. Чувствительность установки к черенковскому излучению ^{40}K существенно выше и достигает 30—35%.

Для исключения влияния ^{40}K и ^{137}Cs , а также других возможных «фоновых» нуклидов на определение объемной активности ^{90}Sr необходимо измерить, например, методом прямой γ -спектрометрии состав и концентрацию фоновых нуклидов в исследуемой пробе. Умножив концентрацию фоновых нуклидов на соответствующую чувствительность, можно найти фоновую скорость счета, которую затем вычесть из общей скорости счета установки. В результате выполнения такой процедуры получают скорость счета, обусловленного регистрацией черенковского излучения только от β -частиц $^{90}\text{Sr}—^{90}\text{Y}$.

Следует отметить, что при прочих равных условиях чувствительность установки к черенковскому излучению от реальной пробы всегда ниже, чем от стандартного раствора радионуклида в дистиллированной воде. Связано это с тем, что в реальной пробе воды за счет присутствия растворенных и взвешенных частиц черенковское излучение ослабляется сильнее, чем в дистиллированной воде. Наглядным подтверждением этому являются данные об ослаблении света дистиллированной и морской водой в ультрафиолетовом диапазоне [10, 11] (рис. 4). Видно, что для длины волны 250 нм коэффициент ослабления света в прибрежной морской воде примерно в 10 раз выше, чем в дистиллированной. В связи с этим при определении объемной активности ^{90}Sr чувствительность установки должна корректироваться с учетом ослабления черенковского излучения в реальной пробе. Соответствующий поправочный коэффициент, на который в этом случае необходимо умножить чувствительность установки, может быть получен из измерений откликов (скоростей счета) установки на черенковское излучение, возбуждаемое внешним источником γ -излучения в кюветах с исследуемой пробой и дистиллированной водой.



Р и с. 4. Коэффициент ослабления для прибрежной морской (1), морской (2) и дистиллированной воды (3)

Расчетные оценки минимально измеряемой активности ^{90}Sr — ^{90}Y представлены в табл. 3. Расчеты проводили по формуле $A = 3(\sqrt{n_F}/t/S\delta)$, где n_F — скорость счета фона; t — продолжительность измерения пробы и фона; S — чувствительность установки; $\delta = 1$ — относительная погрешность измерения с доверительной вероятностью 0,95.

Т а б л и ц а 3. Минимально измеряемая объемная активность ^{90}Sr — ^{90}Y , Бк/л

Объем, л	Продолжительность измерения, ч			
	0,5	2	8	24
0,84	14,3	7,2	3,6	2,1
4,70	6,0	3,0	1,5	0,9
Бесконечный	0,5	0,24	0,12	0,07

Из данных табл. 3 следует, что при увеличении объема пробы происходит снижение уровня минимально измеряемой активности. Так, при увеличении объема пробы в 5,5 раза (с 0,84 до 4,7 л) минимально измеряемая активность ^{90}Sr — ^{90}Y уменьшается примерно в 2,4 раза, для пробы воды бесконечного объема — в 30 раз. Дальнейшего снижения минимально измеряемой активности предполагается достигнуть как за счет уменьшения фона установки, так и путем увеличения ее чувствительности. Если учесть, что фон установки определяется в основном темновыми импульсами фотоумножителя, то его нетрудно снизить, используя для регистрации черенковского излучения два ФЭУ-170, включенных в схему совпадения. В свою очередь чувствительность установки можно повысить в несколько раз за счет увеличения квантовой эффективности фотокатода ФЭУ и площади чувствительной поверхности детектора, а также выбором оптимальных геометрических размеров и объема измерительной кюветы. Оценки показывают, что при реализации указанных технических и конструктивных решений минимально измеряемая активность, приведенная в табл. 3, может быть уменьшена примерно в 10 раз.

Авторы благодарят А.Ю. Румянцеву за поддержку и внимание к работе.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Комиссаров А.Б., Леонов А.Ф., Соломин Е.Ю. и др. Новые радиометры для контроля радиоактивного загрязнения жидких сред. Ядерные измерительные-информационные технологии. — Труды научно-инженерного центра СНИИП, 1997, с. 108—119.
2. Бочков Л.П., Никитин И.А., Тертышник Э.Г. и др. Об определении содержания стронция-90 в природных водах на жидкостных сцинтилляционных спектрометрах по излучению Вавилова—Черенкова. — Радиохимия, 1993, № 1, с. 109—114.
3. Jelly J. Cherenkov Radiation and its Applications. Pergamon Press, 1958.
4. Черняев А.М., Гапонов И.А., Зыков Г.В., Емельянов С.И. Моделирование отклика сцинтилляционного детектора на гамма-излучение сплошных сред. — Труды VI Рос. научной конф. по защите ЯЭУ, Обнинск, 1994, т. 3, с. 115—117.
5. Berger M., Seltzer S. Response functions for sodium iodide scintillation detectors. — Nucl. Instrum. Meth., 1972, v. 104, p. 317—332.
6. Алексанкин В.Г., Родичев С.В., Рубцов П.М. и др. Бета- и антинейтринное излучение радиоактивных ядер. Справочник. М.: Энергоатомиздат, 1989.
7. THORN EMI New Photomultipliers, 1990.
8. Rippon S. An assessment of Cherenkov detectors as fission products monitors in water cooled reactors. — Nucl. Instrum. Meth., 1963, v. 21, № 2, p. 185—191.
9. Sowerby R. Cherenkov detectors for low-energy gamma rays. — Ibid., 1971, v. 97, p. 145—149.
10. Копелевич О.В. Оптические свойства чистой воды в спектральной области 250—600 нм. — Оптика и спектроскопия, 1976, т. 41, вып. 4, с. 666—668.
11. Оптика океана, т. 1. Физическая оптика океана. М.: Наука, 1983, с. 231.