

УДК 539.122.17:621.039.555

КАЛИБРОВОЧНЫЕ ИСТОЧНИКИ (МЕРЫ АКТИВНОСТИ) γ -ИЗЛУЧЕНИЯ НА ОСНОВЕ ФОНОВОЙ ПОЧВЫ

*Бураева Е.А., Давыдов М.Г., Марескин С.А.
(НИИ физики при Ростовском-на-Дону госуниверситете)*

В γ -спектрометрическом методе анализа проб окружающей среды для калибровки счетной геометрии по эффективности регистрации в зависимости от энергии γ -квантов используют образцовые источники γ -излучения, идентичные анализируемой пробе по геометрии измерения (форме и размеру) и материалу (вещественному составу и насыпной плотности). Для материалов минерального и биологического происхождения средний эффективный атомный номер изменяется в пределах 8—19, средняя насыпная плотность 1—2,15 кг/л [1]. Для почвы различного типа средний эффективный атомный номер составляет 6—16, плотность изменяется от 0,8 (почва тундры) до 1,8 (песчаная почва пустынь) при средних значениях 1,1—1,3 кг/л (для сухой почвы с крупностью частиц 0,2—0,5 мм).

Разнообразие условий γ -спектрометрии проб окружающей среды вызвало необходимость разработки стандартных объемных источников γ -излучения. Они могут быть твердыми [2—5], сыпучими [6, 7] и жидкими [8, 9], содержать только один радионуклид [4, 6] или их набор, γ -линии которых дают возможность произвести калибровку эффективности в заданном диапазоне энергии [2—7].

Меры активности приготавливают на основе реактивов, имитирующих вещественный состав анализируемого материала [2, 4, 9], или самого анализируемого материала [7—9], в том числе фоновой почвы. Различия эффективного атомного номера и насыпной плотности счетных образцов и мер активности могут приводить к значительным вариациям коэффициентов самопоглощения [1, 3, 10, 11]. Эти эффекты учитывают с помощью аналитических приближений или метода Монте-Карло. Так, в работе [3] для геометрии Маринелли получена поправка на различие коэффициентов самопоглощения и размерных факторов счетных образцов и меры, в работе [7] отношения коэффициентов самопоглощения, рассчитанные методом Монте-Карло, использовали для оценки влияния параметров геометрии детектора. Результаты работ для конкретно заданных условий измерения и в области энергии выше 100 кэВ хорошо согласуются с экспериментом (0,2—0,8% [3]). Для энергии меньше 100 кэВ расчеты значительно усложняются и не дают надежных результатов.

Для радиоэкологических исследований в определенном регионе необходимо массовое определение природных и искусственных радионуклидов в объектах окружающей среды с помощью различных детекторов и счетной геометрии. Для этих целей наиболее удобным может быть применение объемных сыпучих мер активности, близких по составу и плотности анализируемым природным материалам, отобраным в данном регионе. В работе описаны такие меры активности на основе черноземных и каштановых почв, широко распространенных на юге России.

Процесс приготовления мер активности во многом подобен описанному в работе [6], но немного проще с учетом более узкой области применения (γ -спектрометрический метод). Он включает следующие стадии: подготовка материала осно-

вы и радиоактивных растворов, введение радиоактивных растворов в материал основы, контроль основных характеристик полученной меры активности.

Материал основы. В качестве основы использовали близкие по вещественному составу черноземные и каштановые почвы (1:1). Численные расчеты показывают, что для смеси этих почв эффективный заряд равен 13,3 при отклонении от среднего для каждого типа почвы не более чем на 0,7%. Для грубой оценки коэффициентов самопоглощения низкоэнергетического излучения и их вариаций использовано приближенное соотношение

$$K = \frac{1 - \exp(-\mu H)}{\mu H},$$

где μ — полный линейный коэффициент поглощения γ -квантов в материале счетного образца, см^{-1} ; H — высота (толщина) счетного образца в виде диска [10, 11]. Полный линейный коэффициент поглощения почвы определен через полные мас-

совые коэффициенты $\mu = \rho \mu_m$ при $\rho = 1,11 \text{ кг/л}$, где $\mu_m = \sum_i^n p_i \mu_{mi}$ вычислены с

использованием табличных данных для μ_{mi} элементов [12] и массовой доли элементов p_i . Численные расчеты показывают, что различие коэффициентов самопоглощения черноземных и каштановых почв значимо только при энергии квантов $E_\gamma \leq 30 \text{ кэВ}$ (3—14%), при $E_\gamma \geq 40 \text{ кэВ}$ оно уменьшается до 0,4—0,8%.

В качестве материала основы мер активности использовали 70 проб черноземных и каштановых почв, отобранных в районе Волгодонской АЭС на 10 контрольных участках из горизонта В на глубине 50—60 см. При этом загрязнение почвы искусственными радионуклидами от глобальных выпадений и в результате аварии на Чернобыльской АЭС минимально, сохраняются основные характеристики почвы, в том числе вещественный состав.

После очистки от посторонних включений (растительных остатков, камней и др.) пробы объединяли (общий объем $\sim 10 \text{ л}$), измельчали, доводили до воздушно-сухого состояния, тщательно перемешивали, снова измельчали до размера частиц $\leq 2 \text{ мм}$. Операции перемешивания, измельчения и высушивания повторяли трижды. Конечный материал с крупностью частиц менее $0,074 \text{ мм}$ высушивали при 105°C в сушильном шкафу. Насыпная плотность полученного материала оказалась равной $1,11 \pm 0,01 \text{ кг/л}$, счетных образцов, приготовленных из отобранных 70 проб, $1,03—1,29 \text{ кг/л}$ (среднее $1,12 \text{ кг/л}$).

Для оценки влияния насыпной плотности выполнены численные расчеты коэффициента самопоглощения для диапазона энергии 10—150 кэВ и геометрии диска толщиной 0,7 см при эффективном атомном номере 13,3. Из табл. 1 видно, что с ростом энергии квантов влияние насыпной плотности на изменение коэффициентов самопоглощения уменьшается от 7—14% при 10 кэВ и 1—2% при 50 кэВ до 0,8—1% при 80 кэВ и становится незначимым при 150 кэВ (0,3—1%).

При необходимости можно ввести поправку на различие насыпной плотности счетного образца ρ и меры ρ_0 . Как показано в работах [3, 10], приведенный сигнал $S' = S/A_0$ для заданной счетной геометрии и энергии регистрируемых квантов зависит от насыпной плотности тем больше, чем меньше энергия квантов:

$$S_0 = m(E) + \alpha(E)/\rho,$$

Таблица 1. Коэффициенты самопоглощения γ -квантов в счетных образцах почвы

E , кэВ	$K_{\text{ср}}$	K_{min}	K_{max}	$\Delta K/K_{\text{ср}}$, %
10	0,043	0,046	0,037	7—14
15	0,145	0,157	0,126	8—13
20	0,318	0,340	0,281	7—12
30	0,665	0,686	0,628	3—6
40	0,794	0,809	0,768	2—3
50	0,859	0,859	0,856	0,9—2
60	0,889	0,896	0,872	0,8—2
80	0,921	0,928	0,910	0,8—1
100	0,931	0,935	0,920	0,4—1
150	0,939	0,942	0,931	0,3—1

где коэффициенты $m(E)$ и $\alpha(E)$ можно определить по экспериментально полученному калибровочному графику. С ростом энергии коэффициент $m(E)$ увеличивается, $\alpha(E)$ уменьшается.

Различие сигналов от счетного образца S' и меры S'_0 , обусловленное относительно малым различием их насыпной плотности, $\Delta S' = \alpha(E)(1/\rho - 1/\rho_0)$.

Подобное соотношение можно записать и для изменения коэффициента самопоглощения.

Содержание радионуклидов в материале основы определено на спектрометрической установке РЭУС-II-15 (рабочий эталон второго разряда) [13] в геометрии Д (0,1 л) в пяти сериях измерений спектров после выдержки образцов в герметичном состоянии в течение 14 сут. Время набора каждого спектра 72 ч. Методики обработки данных общепринятые. По результатам γ -спектрометрического анализа содержание ^{137}Cs намного ниже среднего уровня загрязнений земной поверхности в регионе, концентрация природных радионуклидов соответствует их содержанию в фоновой почве 10—50 Бк/кг [6] (табл. 2). В приготовленных мерах активность введенных радионуклидов должна быть по крайней мере в 100 раз выше фоновой, их реперные линии не должны перекрываться с γ -линиями фона. В необходимых случаях при обработке спектров калибровочных мер может быть учтен фон материала основы.

Таблица 2. Удельная активность радионуклидов в фоновой почве

Радионуклид	Удельная активность $A_0 \pm \delta A_0$, Бк/кг	Аналитическая γ -линия, кэВ
^{238}U	51 ± 4	63, 93, 186
^{226}Ra	41 ± 3	295, 352, 609
^{210}Pb	41 ± 3	46,5
^{232}Th	42 ± 4	338, 911, 968
^{228}Th	44 ± 4	583
^{40}K	465 ± 48	1460
^{137}Cs	21 ± 2	662

Радиоактивные растворы. Для калибровки различной счетной геометрии в диапазоне 5—2500 кэВ были использованы аттестованные радиоактивные растворы НПО «ВНИИФТРИ» на основе ^{133}Ba , ^{152}Eu , ^{207}Bi , ^{226}Ra и ^{241}Am и специально приготовленные на основе ^{54}Mn , $^{57,58}\text{Co}$, ^{88}Y , $^{114\text{m}}\text{In}$, $^{139,141}\text{Ce}$, ^{203}Hg [13]. Перечисленные радионуклиды широко применяются в практике метрологического обеспечения γ -спектрометрии.

Аттестация радиоактивных растворов собственного приготовления выполнена на установке РЭУС-II-15 по высокоэнергетическим реперным γ -линиям в геометрии Д 0,1 л со статистической погрешностью 0,5—3% при доверительной вероятности 0,95.

Удельная активность радионуклидов в большинстве исходных растворов ($2 \cdot 10^4$ — $1 \cdot 10^5$ Бк/л) обеспечивает минимальную статистическую погрешность при наборе спектров за приемлемое время. Исключением являются растворы на основе ^{54}Mn (5700 Бк/л) и ^{141}Ce (7200 Бк/л). Погрешность аттестации 8—9%, радиохимическая чистота >99,9%, рН 1.

Приготовление мер активности. Материал основы мер (смесь почв 1:1) многократно пропитывали водно-спиртовым радиоактивным раствором с рН 7 порциями по 20 мл при интенсивном перемешивании. Для достижения высокой степени равномерности распределения радионуклидов в источнике использовали известный метод «гомогенизации в жидкой фазе» [6] — во влажную массу неоднократно (5—7 раз) добавляли спирт-ректификат и интенсивно перемешивали до полного высыхания. После высушивания гомогенизированной массы в вытяжном шкафу при 105 °С материал еще раз тщательно перемешивали и количественно переносили в отдельные счетные сосуды геометрии Д.

Определение характеристик мер активности. Для контроля равномерности распределения активности по объему из разных мест источника отбирали 20 проб массой по 1 г. Многократные измерения показали, что их активность не отличается от средней больше, чем погрешность измерения $\pm 5\%$.

Для контроля возможных потерь радионуклидов в процессе приготовления источников поверхности всех рабочих сосудов промывали не менее 5 раз раствором азотной кислоты (1:1). Остаточное содержание радионуклидов в смывах определяли по γ -спектрам, измеренным в счетной геометрии Д на установке РЭУС-II-15 за 6—12 ч. Потери не превышали 0,1—0,6% относительно исходной активности каждого из введенных в источник радионуклида.

Активность готового герметизированного источника контролировали путем сравнения с соответствующим радиоактивным раствором по γ -спектрам в области 500—2500 кэВ. Установлено их совпадение в пределах погрешности измерений 0,5—2%.

В зависимости от конкретной цели калибровки (типа детектора и счетной геометрии) в материал основы вводили различные радиоактивные растворы и их комбинации. Было приготовлено четыре объемных сыпучих калибровочных источника. Приведем некоторые характеристики этих источников.

1. Радионуклиды с $T_{1/2} \ll 1$ года (^{58}Co , ^{88}Y , $^{139,141}\text{Ce}$ и ^{203}Hg), 16 реперных γ -линий в диапазоне 6—1840 кэВ, в том числе 9 линий с $E_\gamma \leq 75$ кэВ. Предназначен для калибровки счетной геометрии преимущественно в диапазоне 6—75 кэВ. Срок использования от момента приготовления 2 мес вследствие распада ^{141}Ce и ^{203}Hg .

2. Радионуклиды с $T_{1/2} < 1$ года (^{54}Mn , ^{57}Co , $^{114\text{m}}\text{In}$) и долгоживущие ^{133}Ba и ^{207}Bi , 24 реперные γ -линии в диапазоне 5—1770 кэВ, в том числе 14 линий с $E_\gamma \leq 122$ кэВ.

Предназначен для калибровки счетной геометрии в широком диапазоне энергии, в том числе в низкоэнергетической области (до 85—122 кэВ). Через 2—3 мес вследствие распада ^{114m}In нижний предел энергии возрастает до 10 кэВ. Срок использования с момента приготовления 1—2 года.

3. Радионуклиды с $T_{1/2} < 1$ года (^{54}Mn , $^{139,141}\text{Ce}$) и долгоживущий ^{226}Ra , 23 реперные γ -линии в диапазоне 5—2450 кэВ, в том числе 8 линий с $E_\gamma \leq 78$ кэВ. Предназначен для калибровки счетной геометрии в широком диапазоне энергии, в том числе в области до 78 кэВ. При использовании обязателен учет содержания ^{226}Ra в материале основы по фоновому γ -спектру почвы. Со временем распадаются ^{54}Mn , $^{139,141}\text{Ce}$, вследствие чего в спектре будут преобладать γ -линии ^{226}Ra и его продуктов распада в диапазоне энергии 12—2450 кэВ. Срок использования не ограничен.

4. Радионуклиды с $T_{1/2} < 1$ года (^{54}Mn , ^{88}Y) и долгоживущие ^{133}Ba , ^{152}Eu , ^{207}Bi и ^{241}Am , 34 реперные γ -линии в диапазоне 5—1840 кэВ, в том числе 17 линий в области $E_\gamma \leq 122$ кэВ. Через 200 сут активность ^{88}Y (106,61 сут) уменьшается до нерабочего уровня. Через 1,5 года аналогичная ситуация с ^{54}Mn (312,16 сут). В результате рабочий диапазон энергии уменьшается до 10—1770 кэВ. При этом число реперных линий изменяется незначительно, в частности, в области низкой энергии остаются 14 линий. Дальнейший срок использования выше 10 лет.

Зависимость эффективности счетной геометрии от энергии аппроксимировали функцией вида

$$\ln \varepsilon(E) = \sum_{i=1}^n \alpha_i (\ln E)^{i-1}, \text{ где } n = 3-5.$$

Обычно применяют либо одну такую функцию для всего диапазона энергии, либо две для разных диапазонов ($E_\gamma < 100$ кэВ и $E_\gamma > 100$ кэВ). Коэффициенты α_i определяли методом наименьших квадратов по набору экспериментальных точек. Среднеквадратичное отклонение измеренной эффективности от вычисленной по аппроксимационной кривой не превышало 5—10%. Например, аттестация счетной геометрии Д 0,1 л, Д 0,04 л и Д 0,02 л коаксиального германиевого детектора модели 7229 N фирмы «Канберра» (США) в области энергии 30—2500 кэВ выполнена с помощью первых трех источников со среднеквадратичным отклонением 6—8%.

Объемные сыпучие меры можно использовать и для экспериментального определения оптимальной для данной энергии E_γ толщины счетного образца по результатам измерений зависимости аналитического сигнала или его статистической погрешности от толщины.

Приготовленный набор объемных сыпучих мер активности предназначен для внутрилабораторного использования в качестве рабочих источников для калибровки счетной геометрии с объемом менее 0,1 л в широком диапазоне энергии, включая низкоэнергетическую область (< 122 кэВ).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Murray A., Marten R., Johnston A. e.a. Analysis of naturally occurring radionuclides of environmental concentrations by gamma spectrometry. — J. Radioanal. Nucl. Chem., 1987, v. 115, № 2, p. 263—288.
2. Хайкович И.М., Шевригин О.Н., Фоминых В.И. Метрологическое обеспечение спектрометра γ -излучения в системе радиационного мониторинга. — Атомная энергия, 1992, т. 73, вып. 5, с. 387—392.

3. Исаакьян Г.А., Алексеев В.М., Иванов А.И. и др. Применение ООИСН в метрологическом радиационном контроле сырья и объектов окружающей среды. — Там же, с. 393—397.
4. Хайкович И.М., Фоминых В.И., Крисюк Э.М. и др. Метрологическое обеспечение измерений удельных активностей и массовой доли природных радиоактивных элементов в пробах почв и пород. — Там же, 1992, т. 75, вып. 5, с. 350—354.
5. Левочкин Ф.А., Бочвар И.А., Соколова Т.Н. и др. Способ определения активности гамма-излучателей в объемных пробах любых составов и плотности и плоский источник — имитатор для его осуществления. — АНРИ, 2001, № 1, с. 18—23.
6. Ефимов К.М., Бахур А.Е., Салмин Ю.П. и др. Стандартный образец радионуклидного состава на основе природной фоновой почвы (СОРН — ФП). — Там же, 1999, № 4, с. 31—36.
7. Бокун Р.Ч., Григорьев Е.И., Трошин В.С. Учет самопоглощения в гамма-спектрометрии объемных источников. — Измерит. техн., 1999, № 10, с. 54—57.
8. Щербаков Б.Я. Жидкие образцовые источники гамма-излучения. — Атомная энергия, 1985, т. 54, вып. 6, с. 443—444.
9. Щербаков Б.Я. Образцовые источники гамма-излучения для определения содержания радиоактивных элементов в жидких препаратах. — В сб.: Современные методы разделения и определения радиоактивных элементов. М.: Наука, 1989, с. 206—208.
10. Киселева Т.Т., Фирсов В.И., Шулепников М.Н. Учет самопоглощения пробами гамма-квантов в активационном анализе сплавов. — Журн. аналит. химии, 1982, т. 37, вып. 8, с. 1424—1428.
11. Dixon W. Self-absorption of gamma ray in large cylindrical samples. — Nucl. Instr. Meth., 1972, v. 107, № 2, p. 415—418.
12. Машкович В.П., Кудрявцева А.В. Защита от ионизирующих излучений. Справочник. М.: Энергоатомиздат, 1995.
13. Бураева Е.А., Давыдов М.Г., Марескин С.А. Выход радионуклидов в водные растворы при фотоактивации двухфазных мишеней тормозным излучением энергией 20,5 МэВ. — Атомная энергия, 2003, т. 94, вып. 5, с. 391—397.
14. Давыдов М.Г., Рахманов И.Б., Михелев А.П. Фоновые характеристики Ge(Li)-детектора в многослойной пассивной защите. — Там же, 1997, т. 82, вып. 2, с. 388—392.

Поступила в Редакцию 5.09.03

Рефераты статей

УДК 621.039.5

Достов А.И. Механизм возбуждения вибраций в ТВС РБМК. — Атомная энергия, 2004, т. 96, вып. 3, с. 167—175.

В настоящей работе показано, что высокая интенсивность вибраций ТВС РБМК обусловлена параметрическим возбуждением колебаний при воздействии на твэлы аксиального потока теплоносителя. Периодичность воздействия среды обусловлена снарядами режимами течения двухфазного теплоносителя, колебаниями расхода теплоносителя, генерируемыми насосами, турбулизацией потока дистанционирующими решетками и арматурой. Обосновывается необходимость внутриреакторного эксперимента для получения связи распределения паросодержания и вибраций в ТВС РБМК. С этой целью предлагается для измерения паросодержания теплоносителя и вибраций твэлов использовать штатную систему измерений теплогидравлических и нейтронно-физических параметров РБМК и анализ

шумов показаний датчиков контроля высотного распределения энерговыделения. Рис. 1, список лит. 10 назв.

УДК 621.039.524.2.034.3

Филиппов Г.А., Богоявленский Р.Г., Пономарев-Степной Н.Н., Гольцев А.О. Высокотемпературный гелиевый модульный ядерный реактор с шаровыми твэлами для производства электроэнергии и водорода. — Атомная энергия, 2004, т. 96, вып. 3, с. 175—182.

Приводятся результаты оптимизационных нейтронно-физических и теплогидравлических расчетов активной зоны модульного высокотемпературного гелиевого реактора с перемещающимися шаровыми твэлами. Особенностью конструкции таких твэлов является размещение в них микротопливных элементов с многослойными керамическими покрытиями, способных