

ЕКСПЕРИМЕНТАЛЬНЕ ВИЗНАЧЕННЯ МЕТРОЛОГІЧНИХ КОЕФІЦІЄНТІВ ЯДЕРНОЇ ГАММА- СПЕКТРОМЕТРІЇ ОБ'ЄМНИХ ЗРАЗКІВ

О.М. Поп, М.В. Стець

Інститут електронної фізики НАН України
88017, м. Ужгород, вул. Університетська, 21

Експериментально отримані та розраховані двомірні та тримірні метрологічні коефіцієнти в діапазоні енергій гамма-квантів 100-2100 КеВ для визначення питомих активностей гамма-активних нуклідів в об'ємних зразках. Метрологічні коефіцієнти визначались на основі гамма-спектрометрії об'ємних паспортизованих джерел ОІСН-171 (матриця-пісок) та ОІСН-170 (матриця-вода).

Ключові слова: об'ємні зразки, гамма-спектрометрія, метрологія, нуклід, питома активність.

Проблематика

Для гамма-спектрометричного варіанту визначення вмісту гамма-активних нуклідів (ГАН) в зразках основне рівняння активаційного аналізу має вигляд:

$$\Delta S = \frac{1}{\lambda} A_{\gamma} T B \quad (1)$$

де ΔS – площа фотопіка конкретної лінії гамма-випромінювання ГАН з квантовим виходом n ; A_{γ} – гамма-активність ГАН (γ -квант/с): $A_{\gamma} = A_t \cdot P_3 \cdot n$; $P_3 = 1 - e^{-\lambda T C}$;

$T C$ – тривалість виміру; $\lambda = \frac{\ln 2}{T_{1/2}}$ – стала

розпаду ГАН; $T_{1/2}$ – період напіврозпаду ГАН; A_t – активність ГАН (Бк):

$$A_t = A_{II} \cdot P \cdot P_2 = e^{-\lambda T D};$$

$T D$ – проміжок часу між закінченням активації і початком виміру; A_{II} – наведена активність – кількість радіоактивних ядер, що утворилась за проміжок часу опромінення $T I$ за одну секунду, із врахуванням їх розпаду:

$$A_{II} = A_0 \cdot P_1; P_1 = 1 - e^{-\lambda T I};$$

A_0 – миттєва активність (кількість радіо-

активних ядер, що утворюються щосекунди внаслідок активації), і:

$$A_0 = \frac{N_A}{M} \cdot \theta \cdot c \cdot k \cdot [f \cdot \sigma];$$

N_A – число Авогадро; M – атомна маса; θ – ізотопний вміст ядра-мішені в природній суміші хімічного елемента (ХЕ); c – концентрація ХЕ в зразку масою k ; $[f \cdot \sigma]$ – активаційний інтеграл:

$$[f \cdot \sigma] = \int f(E, E_{\max}) \cdot \sigma(E, E_{\max}) dE;$$

$f(E, E_{\max})$ – густина частинок, що взаємодіють із ядрами ХЕ; $\sigma(E, E_{\max})$ – переріз ядерної реакції частинок із ядрами ХЕ; E, E_{\max} – енергія та відповідно максимальна енергія частинок, що взаємодіють із ядрами ХЕ;

$T = \varepsilon \cdot \frac{\Omega}{4\pi}$ – світосила гамма-спектрометра;

$\varepsilon = \varepsilon(E_{\gamma})$ – абсолютна фотоефективність реєстрації гамма-кванта з енергією E_{γ} ;

Фотоефективність $\varepsilon = \varepsilon(E_{\gamma})$ є “власною” характеристикою будь-якого детектора випромінювання. Визначення залежності $\varepsilon = \varepsilon(E_{\gamma})$ в необхідному для аналізу діапазоні енергій – складна експериментальна задача.

Відносний тілесний кут $\frac{\Omega}{4\pi}$

характеризує геометричні розміри як зразка (який може бути як точковим, так і будь-якої форми), так і геометричні розміри чутливої зони детектора, а також взаємне положення (наприклад, відстань)

зразка і детектора. Розрахунок $\frac{\Omega}{4\pi}$ –

громіздка в математичному плані робота навіть для зразків з наявністю декількох осей симетрії. Окрім цього, в кожному випадку цей математичний розрахунок потребує експериментального підтвердження, тому є громіздкою процедурою і в експериментальному плані.

B – коефіцієнт, що враховує втрати гамма-квантів при проходженні їх через речовину зразка, корпус та інші конструкційні деталі детектора, тощо. Коефіцієнт B , крім залежності від вказаних вище факторів, залежить також від маси та хімічного складу зразка, його однорідності, густини, матеріалу упаковки зразка, тощо.

Тому B фактично можна розглядати як добуток декількох різних за природою коефіцієнтів: $B=B_1 \cdot B_2 \cdot B_3 \dots$. Точний розрахунок коефіцієнтів B для кожного конкретного зразка практично неможливий.

Тому, в багатьох практичних випадках, значення T , ε , $\frac{\Omega}{4\pi}$, B , визначаються експериментально. Оскільки як T , так і B , залежать фактично від одних і тих же чинників, є резон розглядати їх як один коефіцієнт:

$$TB_{II} T \cdot B = \varepsilon \cdot \left(\frac{\Omega}{4\pi} \right) \cdot B_1 \cdot B_2 \cdot B_3 \dots$$

і визначати його одночасно, в одному експериментальному дослідженні.

Коефіцієнт TB_{II} виконує, як видно, метрологічні функції – він переводить експериментальну величину ΔS в розмірну кількісну величину A_{II} . Тому є сенс називати його **метрологічним коефіцієнтом**.

Необхідність метрологічного забезпечення прикладної ядерної гамма-спектрометрії (ПЯГС) об'ємних зразків розглянута в [1-3].

Тому в цій роботі ми розглядаємо методику отримання таких метрологічних коефіцієнтів TB_{II} для декількох геометрій та матриць зразків. Експеримент виконано у Відділі фотоядерних процесів Інституту електронної фізики НАН У.

Розрахунок метрологічного коефіцієнта TB_{II}

У випадках гамма-спектрометрії паспортизованих зразків (наприклад, зразків гамма-джерел Cs137, Co60, Eu152 і т.д.) величина A_{II} – відома. Тоді можна записати [5, 6]:

$$\Delta S = \frac{1}{\lambda} \cdot A_{II} \cdot TB_{II} = \frac{1}{\lambda} \cdot A_I \cdot P_3 \cdot n \cdot TB_{II} = \frac{1}{\lambda} \cdot A_{II} \cdot P_2 \cdot P_3 \cdot n \cdot TB_{II}$$

Звідси, враховуючи, що: $\Delta S = I \cdot TC_{жс}$; $TC_{жс}$ – живий час виміру;

$$TB_{II} = \frac{I \cdot TC_{жс} \cdot \lambda}{A_{II} \cdot P_2 \cdot P_3 \cdot n};$$

TB_{II} – значення коефіцієнта TB для паспортизованого зразка, визначене для конкретної лінії E_{γ} з квантовим виходом n ;

Коли паспортизована не активність A_{II} , а питома активність A_{II}'' : $A_{II}'' = \frac{A_{II}}{k}$, тоді:

$$TB_{II} = \frac{I \cdot TC_{жс} \cdot \lambda}{A_{II}'' \cdot k \cdot P_2 \cdot P_3 \cdot n};$$

A_{II}'' – питома активність на дату паспортизації (атестації); TD – проміжок часу між датою атестації і початком вимірів.

Приближення. При вимірах гамма-активностей ГАН із великими $T_{1/2}$, і якщо

$$T_{1/2} \gg TC, \text{ тоді: } \frac{\lambda}{P_3} \approx \frac{1}{TC};$$

$$TB_{II} = \left(\frac{I}{n \cdot k} \right) \cdot \left(\frac{TC_{жс}}{TC} \right) \cdot \frac{1}{A_{II}'' \cdot P_2}$$

Це приближення справедливе і тоді, ГАН із невеликими значеннями $T_{1/2}$, є дочірніми нуклідами довгоживучих

нуклідів. При невеликих загрузках “живий” час $TC_{ж}$ (час фактичної реєстрації гамма-квантів гамма-спектрометром) приблизно дорівнює тривалості вимірів

$$TC: \frac{TC}{TC_{ж}} \approx 1$$

$$\text{Тоді: } TB_{II} = \left(\frac{I}{n \cdot k} \right) \cdot \left(\frac{TC_{ж}}{TC} \right) \cdot \frac{1}{A_i^{II} \cdot \Pi_2} \quad (2)$$

Вираз (2) є робочим для обчислення TB_{II} .

Визначення питомих активностей.

Приведемо вираз для розрахунку питомих активностей A_i^{II} ГАН в досліджуваному зразку:

$$A_i^{II} = \frac{I \cdot TC_{ж} \cdot \lambda}{n \cdot k \cdot TB \cdot \Pi_3}$$

Якщо для зразка теж справедливі Приближення, тоді:

$$A_i^{II} = \frac{I}{n \cdot k \cdot TB} \quad (3)$$

Якщо $TB = TB_{II}$; тоді $A_i^{II} = \frac{I}{n \cdot k \cdot TB_{II}}$ –

вираз для визначення питомих активностей будь-якого ГАН в зразковій невідомого складу із використанням значень TB_{II} .

Прийняття умови $TB = TB_{II}$ означає ідентичність досліджуваного та паспортного зразків.

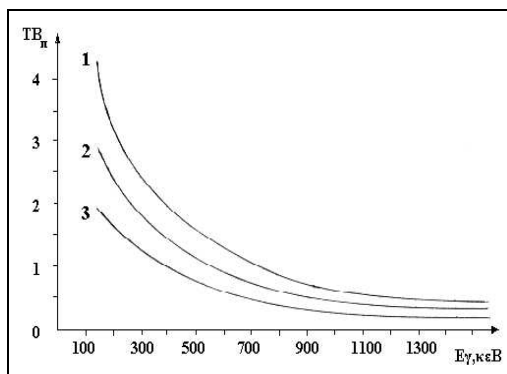


Рис. 1. Двомірні залежності $TB_{II}=f(E_{\gamma})$ для мас 100, 250, 500 г. [5].

Експериментальне визначення TB_{II} . У вираз (2) входять експериментальні

величини $\frac{I}{n \cdot k}$. Для їх визначення було

використано вказане вище зразкове джерело ОИСН–171 для мас k , г: 100; 150; 250; 300; 441; 500; 550; 600; 650; 750; 800 та вимірювальний циліндричний посуд діаметром 100 мм. Гамма-спектрометрія виконана на спектрометричному комплексі [4], до якого входить Ge(Li)–детектор ДГДК–100В ІЕФ НАНУ. Таким чином було отримано множину дискретних двомірних експериментальних залежностей коефіцієнтів $TB_{II}=f(E_{\gamma})$, $k=const$, для кожного значення маси k зразка. Кожна з цих дискретних залежностей може бути апроксимована певною функцією, і таким чином здійснено перехід до неперервних двомірних залежностей $TB_{II}=f(E_{\gamma})$, $k=const$. На рис. 1 [5] приведені залежності $TB_{II}=f(E_{\gamma})$ для мас 100, 250, 500 г.

Отримані двомірні залежності коефіцієнтів ($TB_{II}=f(E_{\gamma})$, $k=const$, діапазон енергій E_{γ} : 120–1500 кеВ; похибка визначення $\pm 10\%$ з довірчою ймовірністю 0,95) достатні для вирішення широкого кола гамма-спектрометричних задач, зокрема екологічних. Однак нерівномірний крок та фіксований список значень k мас дещо звужує можливості ПЯГС.

Поверхні TB_{II} . Маючи дискретну множину експериментальних значень метрологічних коефіцієнтів TB_{II} , які служать в якості реперних, можна отримати більш складну, але зручнішу для практичних задач ПЯГС конструкцію – тримірну неперервну залежність $TB_{II}=f(E_{\gamma},k)$, котру можна представити аналітично (у вигляді емпіричної неперервної залежності), таблично (у вигляді дискретних значень TB_{II} для фіксованих значень пар E_{γ} і k), та графічно, у вигляді поверхні.

Такий розрахунок був здійснений за допомогою регресійного аналізу в EXCEL [8].

Алгоритм розрахунку. Загальна схема розрахунку наступна.

1. Апроксимація. Спершу двомірні експериментальні залежності $TB_{II}=f(E_{\gamma})$ апроксимувались степеневими функціями (коефіцієнт детермінації $R_2 > 0,9$ [8]).
2. Розрахунок таблиці по колонкам. Отри-

мані таким чином аналітичні вирази цих залежностей використовувались для розрахунку значень TB_{II} з рівномірним кроком значень $E\gamma$ для реперних значень k .

3. Розрахунок таблиці по рядкам. Ці неперервні двомірні залежності TB_{II} були використані для розрахунку значень $TB_{II}=f(k)$, $E\gamma=const$ в діапазоні енергій гамма-квантів $E\gamma$ від 100 до 2100 KeV, та мас k зразків з рівномірним кроком 10 до 900 г.

4. Дискретизація значень. Таким чином, на основі послідовного розрахунку двох таблиць – розрахованої по колонкам, а потім перерахованої по рядкам – отримано кінцеву таблицю дискретних розрахункових значень TB_{II} з рівномірним кроком значень як енергій $E\gamma$ (колонки), так і мас k (рядки).

5. Апроксимація. Масив отриманих значень таблиці значень TB_{II} , після лінеаризації (логарифмуванням, де, в разі необхідності, значення TB_{II} помножувались на 10^3 або 10^4), апроксимувався більш складною функцією, $TB_{II}=f(E\gamma, k)$.

6. На основі цих апроксимованих даних будувались їх графіки – поверхні.

Розрахунки було здійснено для двох типових геометрій зразків (циліндричний посуд двох різних розмірів – об'ємом 1 л та 100 мл) та двох матриць зразків (пісок та вода).

На рис. 2 приведено графік поверхні $TB_{II}=f(E\gamma, k)$ для об'єму 1 л (циліндр діаметром 100 мм).

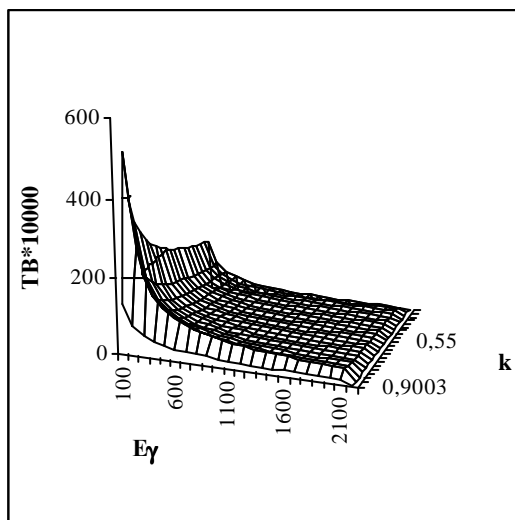


Рис. 2. Тривимірна залежність $TB_{II}=f(E\gamma, k)$.

Висновки

1. Використання на протязі тривалого часу двомірних та тримірних метрологічних коефіцієнтів TB_{II} дозволило вирішити низку задач кількісних визначень питомих активностей ГАН в об'ємних зразках доквілля в інтервалі мас 10-1000 г – ґрунтів, донних відкладень, вод, нафти, крові. Похибка вимірів, як правило, становить 10-20% і визначається, в основному, статистичною похибкою реєстрації гамма-квантів і яка є домінуючою серед інших джерел випадкових похибок. Вклад похибки за рахунок похибки у визначенні метрологічних коефіцієнтів TB_{II} є систематичним, однак меншим, ніж вклад статистичної похибки і становить 2-5% в області 120-700 KeV та 5-15% в області 700–2100 KeV і може бути зменшений в разі необхідності.

2. Значення метрологічних коефіцієнтів TB_{II} , як зазначалось, розраховані для діапазону енергій гамма-квантів 100-2100 KeV; це обумовлено діапазоном енергій аналітичних ліній гамма-квантів ГАН Eu^{152} паспортизованого джерела ОИСН-171. Для діапазону енергій менше 120 KeV визначення TB_{II} ускладнюється, позаяк відсутні необхідні для цього діапазону паспортизовані джерела ГАН; однак експериментальний пошук в цьому напрямку здійснено (див. [7]).

3. При визначенні питомих активностей у зразках гірських порід, кераміки та ін., питома густина яких близька до значень питомої густини матриць стандартів (пісок (густина 1,2-1,6 г/см²), вода (густина 1 г/см²)), але зразки гетерогенні, необхідно проявляти обережність, позаяк значення питомих активностей для таких зразків можуть систематично відрізнятися від дійсних.

4. Це означає, що не виконується умова ідентичності зразка і стандарта: $TB = TB_{II}$. Теоретично вплив гетерогенності підтверджено в [9].

5. Таким чином, постає задача розширення списку необхідних метрологічних коефіцієнтів TB_{II} за рахунок розширення списку стандартних зразків (зокрема, в бік гетерогенності, значень густини). Це – ве-

лика робота (в СРСР над розробкою стандартних зразків, відповідних державних стандартів працювала низка метрологічних інститутів).

6. Позаяк значення $\frac{\Omega}{4\pi} < 1$, $B \leq 1$, тому

$TB_{II} \leq \epsilon$ – значення абсолютної фото-ефективності ресстрації гамма-кванта з енергією $E\gamma$ є верхню межею значень TB_{II} . Нижня межа значень TB_{II} визначається геометрією вимірів, формою та складом всієї можливої множини досліджуваних зразків і може бути визначена експериментально (формально нижня межа значень $TB_{II} = 0$, однак практичного значення цей факт не має). Для кожного конкретного зразка відповідні значення TB_{II} будуть знаходитись в діапазоні між цими межами – верхню та нижню, заповнюючи, загалом, неперервно цей діапазон.

7. Перехід від одного конкретного зразка до іншого конкретного зразка буде означати перехід від одної залежності TB_{II} до іншої; цей перехід може бути встановлений емпірично і описаний аналітично.

8. Ми показали, що отримана нами поверхня значень $TB_{II} = f(E\gamma, k)$, є сімейством двомірних значень TB_{II} , котрі,

змінюючи свої значення (форму), створюють тримірну залежність – поверхню. Тому такі зміни форми двомірних та тримірних TB_{II} можна розглядати як морфінг (морфінг – плавний перехід одної кривої, поверхні, об'єму в інший).

9. В експериментальній фізиці морфінг під іншими назвами відомий давно. В нашому випадку є необхідність та експериментальна можливість, розгляду залежностей TB_{II} більшої розмірності – $TB_{II} = f(E\gamma, k, \text{густина, гетерогенність, ефективний заряд матриці зразка})$.

10. Здійснення такого плану, на наш погляд, потребує відносно невеликої кількості експериментальних (реперних) точок, позаяк, як видно із рис. 1, рис. 2, отримані нами дво- та тримірні залежності TB_{II} – це гладкі, монотонні функції, без особливих точок.

Цей шлях – побудова залежностей більшої розмірності на основі апроксимації масиву залежностей меншої розмірності та морфінг багатовірних TB_{II} – можна розглядати як один із шляхів розв'язання метрологічних проблем гамма-спектрометрії об'ємних зразків.

Література

1. Хайкович И.М. и др. Метрологическое обеспечение спектрометрии гамма-излучения в системе радиационного мониторинга // Атомная энергия. – Т.73. – Вып.5, ноябрь 1992. – С. 392.
2. Хайкович И.М. и др. Метрологическое обеспечение измерения удельной активности и массовой доли природных радиоактивных элементов в пробах почв и пород методом спектрометрии гамма-излучения // Атомная энергия. – Т.75. – Вып.5, ноябрь 1993. – С. 355.
3. Исаакян Г.А. и др. Применение ООИСН в метрологическом радиационном контроле сырья и объектов окружающей среды // Атомная энергия. – Т.73. – Вып. 5, 1992. – С. 393–396.
4. Спектрометр гамма – излучения СЕГ – 40 Ge – 1К. Инструкция по эксплуатации. НПК “Спектр”. – Киев, 1999.
5. Стець М.В., Стець М.М., Яцків С.С. Методика метрологічного забезпечення гамма-спектрометрії зразків // Зб. Проблеми економічного та соціального розвитку регіону і практика наукового експерименту. – Київ–Ужгород–Ніредьгаза. – Вип.18, 2002. – С. 172-176.
6. Стець М.В., Маслюк В.Т., Небола І.І. Гамма-спектрометрія зразків доквілля карпатського регіону (донні відкладення річки Латориця, 2000-2001 рр.) // Науковий вісник Ужгородського університету. Сер. Фізика. – 2003, № 11. – С. 38–44.
7. Стець М.В., Маслюк В.Т., Стець М.М.. Розробка об'ємних стандартів

гамма-излучения с использованием изотопов рядов урана в цеолитовой матрице и стандарта ОИСН-171 // Тези доповідей V конференції по фізиці високих енергій, ядерній фізиці і прискорювачам. 26 лютого-2 березня 2007 р. Харків. – 2007. – С. 41.

8. Сингаевская Г.И. Функции в EXCEL. Диалектика. – М., 2005. – 880 с.
9. Прокопенко В.С. та ін. Про вплив матриці на похибку при контролі активності радіоактивних відходів // Ядерна фізика та енергетика. – Т. 10. – №3, 2009. – С. 326-330.

EXPERIMENTAL DETERMINATION OF METROLOGICAL COEFFICIENTS OF NUCLEAR GAMMA-SPECTROMETRY OF BULKY SAMPLES.

O.M. Pop, M.V. Stets

Institute of Electron Physics, Ukrainian National Academy of Sciences
21 Universitetska Str., 88017, Uzhhorod

Two and three dimensional metrological coefficients in the 100–2100 keV gamma energy range have been obtained experimentally and calculated for determination of specific activities of gamma-active nuclides in bulky samples. Metrological coefficients were determined using gamma-spectrometry of certified bulky sources OISN–171 (sand matrix) and OISN–171 (water matrix).

Key words: bulky samples, gamma-spectrometry, metrology, nuclide, specific activities.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЕ ОПРЕДЕЛЕНИЕ МЕТРОЛОГИЧЕСКИХ КОЭФФИЦИЕНТОВ ЯДЕРНОЙ ГАММА-СПЕКТРОМЕТРИИ ОБЪЕМНЫХ ОБРАЗЦОВ

O.M. Поп, M.B. Стец

Институт электронной физики Национальной академии наук Украины
88017, г. Ужгород, ул. Университетская, 21

Экспериментально получены и рассчитаны двумерные или трехмерные метрологические коэффициенты в диапазоне энергий гамма-квантов 100-2100 КэВ для определения удельных активностей гамма-активных нуклидов в объемных образцах. Метрологические коэффициенты определялись на основе гамма-спектрометрии объемных паспортизованных источников ОИСН-171 (матрица-песок) и ОИСН-170 (матрица-вода).

Ключевые слова: объемные образцы, гамма-спектрометрия, метрология, нуклид, удельная активность.