УДК 539.1.078

## РАСШИРЕНИЕ ВОЗМОЖНОСТЕЙ 4π-ГАММА-СПЕКТРОМЕТРОВ «ПРИПЯТЬ»

С. К. Андрухович<sup>1</sup>, А. В. Берестов<sup>1</sup>, С. Н. Гаркуша<sup>1</sup>, Э. А. Рудак<sup>1</sup>, А. М. Хильманович<sup>1</sup>, А. С. Узунбаджаков<sup>2</sup>, Ф. Е. Зязюля<sup>3</sup>, Н. Антович<sup>4</sup>

<sup>1</sup> Институт физики Национальной академии наук Беларуси, Минск, Беларусь <sup>2</sup> ОК УП «АКСИКОН» Национальной академии наук Беларуси, Минск, Беларусь <sup>3</sup> НЦ ФЧВЭ, Белорусский государственный университет, Минск, Беларусь <sup>4</sup> Физический факультет, Черногорский университет, Подгорица, Черногория

Сообщается о новых измерительных возможностях шестикристальных гамма-спектрометров серии «Припять», имеющих близкую к  $4\pi$  геометрию регистрации и большой рабочий объем измерительной камеры (до 5 л). Описаны принцип работы электроники новой системы регистрации и программные методы обработки получаемых спектров. Приводятся минимально измеряемые объемные активности для модернизированного спектрометра «Припять» (для  $^{137}$ Cs,  $^{226}$ Ra,  $^{232}$ Th < 1 Бк/л, для  $^{40}$ K < 10 Бк/л).

#### Введение

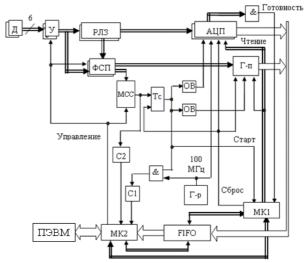
Гамма-спектрометры серии «Припять» [1], разработанные и изготовленные в Институте физики НАН Беларуси в рамках Государственной программы по преодолению последствий аварии на ЧАЭС в Республике Беларусь в конце 80-х годов, установлены и успешно работают в различных организациях страны. Отличительной особенностью спектрометров является геометрия регистрации, близкая к  $4\pi$  (внутренний рабочий объем представляет собой куб со стороной  $185 \, \mathrm{mm}$ , в каждую грань которого вписан NaI(Tl)-детектор  $\varnothing$   $150 \times 100 \, \mathrm{mm}$ ).

До недавнего времени основной областью применения спектрометра «Припять» являлось проведение массового экспрессного анализа содержания радионуклидов  $^{137}$ Cs,  $^{40}$ K в образцах различной природы и формы. Спектрометр имеет рекордные показатели по чувствительности регистрации и способен обнаруживать наличие радионуклидов цезия в воде на уровне  $10~{\rm K}/{\rm h}$  за время измерения не более  $1~{\rm muh}$ .

В 2005 г. в Институте физики им. Б. И. Степанова НАН Беларуси завершена ОКР, результатом которой явилась разработка новой системы регистрации для гамма-спектрометров «Припять», основанной на регистрации спектров различной кратности совпадений, и двух методик выполнения измерений для 4π-гамма-спектрометров с большим рабочим объемом, позволяющими производить контроль за содержанием гамма-излучающих радионуклидов <sup>137</sup>Сs, <sup>40</sup>K, <sup>232</sup>Th, <sup>226</sup>Ra в продуктах питания, воде, строительных материалах и <sup>220</sup>Rn в воздухе в соответствии с существующими допустимыми уровнями.

# 1. Система регистрации спектрометра «Припять-2п»

Принцип работы новой системы регистрации (рисунок), разработанной для спектрометра «Припять», следующий.



Блок-схема системы регистрации спектрометра "Припять-2п": Д - детекторы; У - усилители; РЛЗ - распределенные линии задержки; АЦП - преобразователи заряд-код; ФСП - формирователи со следящим порогом; МСС - мажоритарная схема совпадений, ОВ одновибратор; Г-п - годоскоп; Тс - триггер флага события; С1 - делитель частоты счетчика мертвого времени; С2 - делитель частоты счетчика событий; Г-р - генератор; МК1 и МК2 - микроконтроллеры; FIFO - буферная память; ПЭВМ - персональная ЭВМ.

Импульсы тока, поступающие с датчиков, усиливаются быстрым усилителем (У) с программноуправляемым коэффициентом усиления. Сигнал с выхода усилителя анализируется двумя устройствами: ФСП и АЦП. Сигнал с усилителя поступает на АЦП через РЛЗ, имеющую 10 промежуточных выводов. С одного из указанных выводов берется задержанный сигнал для ФСП. Сигналы с ФСП подаются на МСС. Из сигнала на выходе МСС формируются строб-сигналы для АЦП и годоскопа (Г-п), фиксирующего одновременность срабатывания датчиков.

По окончании преобразования всеми преобразователями выставляется сигнал готовности и программа управления микроконтроллера МК1 записывает данные из АЦП, отмеченных в годо-

скопе, в FIFO. Программа управления микроконтроллера МК2 передает данные из FIFO в компьютер основной программе.

В случае наличия в сигнале с детектора шумовых коротких импульсов возможно их подавление в спектре при помощи дискриминации сигнала по длительности, которое проводится при помощи дополнительного регистра годоскопа, фиксирующего наличие импульса на входе через контрольный интервал времени. Если импульса нет, то событие отбрасывается и производится сброс всех АЦП и годоскопа.

При разработке новой электроники системы регистрации спектрометра «Припять» использовались современные комплектующие белорусского производства (Интеграл) и компоненты ведущих западных фирм (Analog Devices, Xicor, Atmel, Texas Instruments, Data Delay Devices и др.).

Габариты компонент системы регистрации позволяют встраивать ее в системный блок ПЭВМ, образующий с ней единый блок регистрации БР-2п.

## 2. Методы измерения активности естественных и техногенных радионуклидов на спектрометре «Припять»

Отличительной особенностью спектрометра «Припять» по отношению к однодетекторным сцинтилляционным спектрометрам является возможность получения спектров совпадений при регистрации каскадного гамма-излучения, испускаемого радиоизотопами, что дает дополнительную информацию для расшифровки спектров.

Аппаратура системы регистрации, описанная выше, позволяет регистрировать события кратностью (числом одновременно сработавших детекторов) от 1 до 6.

В целях сокращения объема информации обычно регистрируются спектры совпадений кратностями 1, 2, 3. Спектры более высоких кратностей совпадений суммируются в спектр с максимальной граничной кратностью.

В табл. 1 представлены сгруппированные по диапазонам данные о гамма-линиях семейств <sup>238</sup>U и <sup>232</sup>Th, изотопов <sup>137</sup>Cs и <sup>40</sup>K. В этой таблице отмечены линии, входящие в каскады множественностью 2 и 3. Часть из линий, начинающихся с верхних возбужденных уровней и являющихся родоначальниками каскадов, не включены в таблицу, так как имеют низкий квантовый выход.

В зависимости от радионуклидного состава образца полученные спектры можно обрабатывать либо с помощью традиционной методики обработки линейчатых спектров по фотопикам, либо с помощью матричного метода обработки сцинтилляционных спектров, при котором про-

водится подгонка измеренного реального спектра суммой функций откликов спектрометра на спектры излучения радионуклидов, предположительно входящих в состав образца.

При обработке спектра матричным методом энергетический диапазон спектрометра разбивается на отдельные интервалы. Ширины и положения интервалов для каждой конкретной задачи могут определяться отдельно из условия максимальной устойчивости решения системы уравнений к вариациям значений скорости счета в интервалах. В табл. 1 приведены варианты разбиения энергетической шкалы, предлагаемые в работах [2, 3], для различных типов сцинтилляционных спектрометров. В колонках 16 - 19 указаны схемы разбиения, используемые в спектрометрах «Припять» при измерениях в режиме «ЕРН + <sup>137</sup>Сs» и в режиме измерения биологических образцов «Б $\hat{\text{HO}}$  <sup>137</sup>Cs + <sup>40</sup>K». Функции отклика спектрометра на излучение отдельных радионуклидов или равновесных  $P_{\rm ij}$  семейств нуклидов для каждой геометрии измерений определяются экспериментально при проведении калибровочных измерений и заносятся в специальный файл в виде матрицы (1) значений чувствительности спектрометра в энергетических интервалах:

$$P_{ij} = \frac{S_{ij} - F_i}{A_i},\tag{1}$$

где i — индекс радионуклида или семейства радионуклидов; j — индекс интервала;  $F_j$  — фоновая скорость счета в интервале j;  $S_{ij}$  — скорость счета в интервале j от градуировочного источника, содержащего отдельный радионуклид или семейство радионуклидов i с  $A_i$  активностью.

Для учета самопоглощения излучения веществом измеряемого образца с конкретной массой и плотностью величины  $P_{ij}$  для него получают из измеренных при калибровке функций отклика спектрометра на излучение эталонных образцов объемом 1 л и с различной плотностью с помощью локально параметрического метода гладкой аппроксимации (метода «двух опор»), предложенного в [4]. Для учета зависимости  $P_{ij}$  от массы и объема (геометрии) образца его значение умножается на коэффициент, получаемый аппроксимацией калибровочных измерений для образцов с постоянной плотностью различного объема.

Значения активности радионуклидов и семейств радионуклидов в образце определяются из системы (2) уравнений

$$\sum_{i=1}^{n} A_i \cdot P_{ij} = S_j - F_j , \qquad (2)$$

Таблица 1. Основные характеристики гамма-излучения 137Сs, 40К, 238 U<sub>22</sub>, 222Th<sub>90</sub>

		Режим измерения БИО 137 Сs + 40 К	k=1	19						,			1650		-												1000	
	«Припять»		k=3	18	2900				1820	1800									1400	1400								
	ιΠ»	Режим измерения EPH + <sup>137</sup> Cs	k=2	17	2900			2150	2140					1610					Ţ									
ий			<i>k</i> = 1	16	3300		2300		2000					1610	1590			1			1		1270					
Диапазоны энергий	»ecc»	63 × 63 ИК63 75 мл	<sup>222</sup> Rn <sup>137</sup> Cs	15					1900				,	1600	1600							1300	1300			1050	1050	2
Диапа	«Прогресс»	63 × 63 маринель I л		14	2800			1950	1950					1600	1600						•	1300	1300					
	предлагаемые в [3]	$150 \times 100$ $650 \text{ cm}^2$	100/	13	2860 2530				1840			1670	1660	1560	1560				-			1380						086
		1	/ 400 I	12	2780	2360			1900		,	1600				1550						1380		1240		1085	1000	
		80 × 80 c кол. 23 × 60	/20 r	11	2790	2340			1900			1600	1650	1565	1565							1380			1200		066	066
137.2	ప			10																								
40-	¥			6														$^{40}$ K										
	461,	<i>k</i> = 3		∞	+																							
1 5	22-Th90	k=2	7	+																								
,	*	Изотоп	Изотоп		<sup>208</sup> T1								$^{228}$ Ac		$^{228}$ Ac		$^{228}$ Ac		$^{228}$ Ac									228Ac
		Изотоп k = 2 k = 3		5													·								+			
	$^{23}\mathrm{U}_{92}$			4						+															+			
	4			3		<sup>214</sup> Bi	214Bi	<sup>214</sup> Bi	<sup>214</sup> Bi	$^{214}$ Bi	<sup>214</sup> Bi	$^{214}$ Bi		<sup>212</sup> Bi		<sup>214</sup> Bi				$^{214}Bi$	$^{214}$ Bi	$^{214}$ Bi	$^{2I4}$ Bi	<sup>214</sup> Bi	<sup>214</sup> Bi	$^{214}\mathrm{Bi}$	<sup>234</sup> Pa	
	}	Кван- товый выход, %			34,5	1,65	5,3	1,23	2,2	16,6	3,07	1.2	1.9	2.7	3.7	2.3	6.0	10.3	6.0	2.6	1.44	4.18	1.56	8.9	1.82	16.0	9.0	17.5
	Энер- гия, кэВ				2615	2448	2204	2118	1847	1765	1730	1991	1630	1620	1588	1509	1496	1461	1459	1408	1401	1378	1281	1238	1155	1120	1001	696

Продолжение табл. 1

Г														-												Γ			
61						800									200														
18						800	3						,.			450													
17									750					999															
16					820	)									520														
15			-										i i	220	550			350	350							200			
14			•		008		800		720		720	630	630	520	520		380												
13		***	098										099	240				385		<b>I</b> i			l	283	270	210		100	85
12			875									ļ	999	550				372						282	270	210	205 165	102	88
=			820										099	240				375						280	270	210	205 165	105	06
10												137Cs				, ,													
6																													
8														+	+									+					
7			+											+	+									+					
9		$^{228}$ Ac	$ m LL_{802}$	$^{228}$ Ac		$^{232}$ Th		<sup>212</sup> Bi		$^{212}$ Bi				$^{208}$ TI	$_{208}$ T1	$^{228}$ Ac	$^{228}$ Ac		$^{228}$ Ac	$^{228}$ Ac	$^{228}$ Ac	qd <sub>ziz</sub>		$_{ m 508}$ TI	<sup>228</sup> Ac			<sup>228</sup> Ac	$^{228}$ Ac
5					+				+		+		+																
4					+				+		+		+																
3	<sup>214</sup> Bi				$^{214}\mathrm{Bi}$		<sup>214</sup> Pb		<sup>214</sup> Bi		$^{214}$ Bi		$^{214}$ Bi					$^{214}Pb$					<sup>214</sup> Pb			<sup>214</sup> Pb	<sup>226</sup> Ra		
2	3.34	29.0	4.3	6.0	1.31	4.84	1.21	2.0	4.9	6.3	1.6	85.0	48.4	28.7	99.2	4.0	1.9	39.1	10.4	3.36	8.0	3.41	19.2	2.3	3.7	7.5	3.7	2.9	1.36
1	934	911	860	840	908	794	982	785	892	727	999	661	609	583	511	463	409	352	338	328	322	300	295	277	270	242	186	129	99.5

где  $A_i$  - активность i -го радионуклида или семейства радионуклидов;  $S_j$  — скорость счета импульсов в интервале j при измерении образца;  $F_j$  фоновая скорость счета в j-м интервале, n — число компонент (радионуклидов) в образце.

Количество энергетических интервалов для обработки выбирается таким образом, чтобы система уравнений была избыточной, т.е. количество уравнений превышало количество неизвестных. Решение системы уравнений (приближенное) находится с помощью метода наименьших квадратов или адаптированного метода максимального правдоподобия. Решение системы в матричном виде (3) выглядит следующим образом [5]:

$$A = (P'WP)^{-1} \cdot P'WY, \qquad (3)$$

где A — вектор параметров решения системы; P - конструкционная матрица системы (4), составленная из  $P_{ii}$ :

$$P = \begin{pmatrix} P_{11} & \dots & P_{1i} & \dots \\ \dots & \dots & \dots & \dots \\ P_{j1} & \dots & P_{ji} & \dots \\ \dots & \dots & \dots & \dots \end{pmatrix}; \tag{4}$$

Y - вектор значений из правой части системы уравнений  $(S_j$  -  $F_j)$ ; W - матрица, обратная ковариационной матрице значений Y.

В случае, если значения  $Y_j$  не коррелированны, матрица W имеет диагональный вид (5)

$$W = \begin{pmatrix} 1/\sigma_1^2 & \dots & 0 & \dots \\ & \ddots & & \ddots & \dots \\ 0 & \dots & 1/\sigma_j^2 & \dots \\ & \dots & \dots & \dots \end{pmatrix},$$
(5)

где  $\sigma_i$  – дисперсия значения  $Y_i$ .

Полная относительная погрешность активности i-го радионуклида или семейства радионуклидов ( $P_{\partial os} = 0.95$ ) определяется как

$$\delta A_{i} = \delta A_{syst} + \frac{1}{A_{i}} \sqrt{\sum_{j=1}^{n} \left[ \frac{\partial A_{i}}{\partial (S_{j} - F_{j})} \right]^{2} \cdot (\Delta S_{j}^{2} + \Delta F_{j}^{2})}, (6)$$

где  $\Delta S_j$  и  $\Delta F_j$  - абсолютные значения статистической погрешности измеренной и фоновой скорости счета в интервале j;  $\delta A_{syst}$  - не исключенная систематическая составляющая погрешности, определяемая при поверке спектрометра.

Значение производной  $\partial A_i / \partial (S_j - F_j)$  определяется численно путем решения системы для значения скорости счета  $S_j$ , измененной на 0.1%.

Измерение удельной активности смеси радионуклидов с неизвестным составом возможно выполнять в случае, если в спектре имеются одиночные или слабо перекрывающиеся линии (пики полного поглощения). Алгоритм обработки в этом случае основан на поиске пиков, разложении мультиплетов для наложенных пиков, определении их площади путем подгонки аналитической кривой, определении энергий найденных пиков, их идентификации по библиотеке изотопов. Расчет активности идентифицированных радионуклидов в этом случае проводится программным обеспечением с учетом самопоглощения гаммаизлучения материалом образца на основании калибровочных измерений эффективности регистрации гамма-квантов различных энергий и справочных коэффициентов поглощения.

#### Заключение

В Институте физики им. Б. И. Степанова НАН Беларуси разработаны и утверждены в Белорусском государственном институте метрологии (БелГИМ) и Госстандарте две методики выполнения измерений: методика измерения объемной активности радона в воздухе жилых и служебных помещений и плотности потока радона с поверхности земли и строительных конструкций на сцинтилляционных 6-кристальных спектрометрах «Припять» (МВИ.МН 2397-2005) и методика выполнения измерений удельной активности естественных и техногенных радионуклидов в счетных образцах на сцинтилляционных 6спектрометрах кристальных «Припять» (МВИ.МН 2424-2005).

Проведена модернизация гамма-спектрометров «Припять» в двух организациях-потребителях: БелГИМ и Институте физике им. Б.И. Степанова НАН Беларуси. Спектрометры прошли метрологическую аттестацию.

Спектрометры «Припять» в варианте «Припять-2п» полностью отвечают потребностям пользователей по измерению объемной (ОА) и удельной активности (УА) естественных и техногенных гамма-излучающих радионуклидов (<sup>137</sup>Cs, <sup>40</sup>K, <sup>226</sup>Ra, <sup>232</sup>Th) в воде, продуктах питания, сельскохозяйственном сырье, продукции лесного хозяйства, почве и других объектах окружающей среды, удельной эффективной активности естественных радионуклидов в строительных материалах, измерению объемной активности радона в воздухе и плотности потока радона с поверхности земли и строительных конструкций. Они могут использоваться при экологическом мониторинге, сертификации продукции, таможенном досмотре и т.д.

Полных аналогов спектрометру «Припять» другими производителями не выпускается. Измерительные возможности спектрометра «Припять-2п» превышают уровень лучших схожих серийно выпускаемых аналогов: радиометров спектрометрического типа и бета-гамма-спектрометров.

Преимущества спектрометра «Припять-2п» по отношению к однокристальным сцинтилляционным радиометрам и спектрометрам выражаются в  $4\pi$ -геометрии регистрации, упрощенной пробоподготовке, возможности неразрушающего контроля, совмещении амплитудного анализа с временным (по совпадениям), экспрессности измерений, более высокой чувствительности.

Минимально измеряемые удельные активности (Бк/кг)  $^{137}$ Cs,  $^{226}$ Ra,  $^{232}$ Th,  $^{40}$ K для модернизи-

рованного спектрометра «Припять» следующие:

$$^{137}{\rm Cs}$$
  $^{226}{\rm Ra}$   $^{232}{\rm Th}$   $^{40}{\rm K}$  He более 1 He более 1 He более 10

В табл. 2 приведены экспериментально измеренные эффективности регистрации спектрометра «Припять» в зависимости от положения точечного источника в измерительной камере для энергий гамма-квантов, перекрывающих весь энергетический диапазон, в котором работает данный спектрометр. Из этих данных видно, что анизотропия чувствительности спектрометра «Припять» для различных точечных геометрий регистрации составляет 10 % от среднего значения.

	,	- <b>F</b>		P P P		
Do	Линия,		сть регистрации д сометрий измерен	Максимальное отклоне-		
Радионуклид	кэВ	Центр	1 см от сере- дины ребра	2 см от угла	ние эффективности от значения в центре, %	
<sup>137</sup> Cs	662	0,176	0,176	0,157	11	
<sup>228</sup> Th	239	0,188	0,165	0,149	20	
<sup>228</sup> Th	583	0,063	0,057	0,053	16	
<sup>228</sup> Th	2615	0,018	0,018	0,014	20	
<sup>88</sup> Y	898	0,134	0,131	0,114	15	
<sup>88</sup> Y	1836	0.067	0.068	0.055	18	

Таблица 2. Анизотропия чувствительности спектрометра «Припять»

На базе разработанных методик и 32-кристального спектрометра АРГУС [6] планируется создание образцовой установки для эталонных измерений активности образцов большого объема или нестандартных геометрий (например, эталонных образцов для СИЧ).

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- 1. Андрухович С.К., Берестов А.В., Гутько В.И. и др. Высокочувствительный шестикристальный гамма-спектрометр «Припять». Минск, 1993. 40 с. (Препр. / АН Беларуси. Ин-т физики; № 681).
- 2. *Методика* измерения активности радионуклидов в счетных образцах на сцинтилляционном гаммаспектрометре с использованием программного обеспечения «Прогресс». М.: ГП ВНИИФТРИ, 1996.
- 3. *Бобров В.А., Гофман А.М.* Лабораторный гаммаспектрометрический анализ естественных радиоактивных элементов. Новосибирск, 1971. 20 с.
- 4. Соколов А.М. Программа POLAS для построения

- по экспериментальным данным сглаженной зависимости и ее производной. Киев, 1986. 15 с. (Препр. / АН УССР. Ин-т ядерных исслед.; КИЯИ-86-40).
- Худсон Д. Статистика для физиков. М.: Мир, 1970. - 296 с.
- 6. Andrukhovich S.K., Antovich N., Berestov A.V. et al. Positron investigation in the Institute of Physics National Academy of Sciences of Belarus // Current Problems in Nuclear Physics and Atomic Energy: Proc. of the Int. Conf. (Kyiv, May 29 June 03, 2006). Kyiv, 2007. P. I. 393 401.

### РОЗШИРЕННЯ МОЖЛИВОСТЕЙ 4л-ГАММА-СПЕКТРОМЕТРІВ "ПРИП'ЯТЬ"

# С. К. Андрухович, А. В. Берестов, С. Н. Гаркуша, Е. А. Рудак, А. М. Хильманович, А. С. Узунбаджаков, Ф. Е. Зязюля, Н. Антович

Повідомляється про нові вимірювальні можливості шестикристальних гамма-спектрометрів серії «Прип'ять», що мають близьку до  $4\pi$  геометрію реєстрації та великий робочий об'єм вимірювальної камери (до 5 л). Описано принцип роботи електроніки нової системи реєстрації та програмні методи обробки одержаних спектрів. Наводяться мінімально вимірювані об'ємні активності для модернізованого спектрометра «Прип'ять» (для  $^{137}$ Cs,  $^{226}$ Ra,  $^{232}$ Th < 1 Бк/л, для  $^{40}$ K < 10 Бк/л).

### EXTENSION OF ABILITIES OF THE $4\pi$ -GAMMA-SPECTROMETERS "PRIPYAT"

S. K. Andrukhovich, A. V. Berestov, S. N. Harkusha, E. A. Rudak, A. M. Khilmanovich, A. S. Uzunbadjakov, F. E. Zyazyulya, N. Antovich

The new measuring possibilities of 6-crystal gamma-rays spectrometers of "Pripyat" type are reported. Distinctive features of these spectrometers are the  $4\pi$  registration geometry and large sensitive volume (up to 5 l). Principle of operation of the new registration system and the processing methods of spectra using the corresponding software are described. The minimal volume activities measured by using modernized spectrometers of "Pripyat" type are presented ( $^{137}$ Cs,  $^{226}$ Ra,  $^{232}$ Th < 1 Bq/l,  $^{40}$ K < 10 Bq/l).

Поступила в редакцию 23.06.06, после доработки — 14.06.07.