

Учет самопоглощения в гамма-спектрометрии объемных источников

Р. Ч. БОКУН, Е. И. ГРИГОРЬЕВ, В. С. ТРОШИН

Развит расчетный метод учета самопоглощения γ -излучения в объемных образцах для энергий 0,1—3 МэВ и плотностей 0,2—2 г/см³, характерных в радиозоологии. Получено экспериментальное подтверждение расчетов, выполненных для стандартных геометрий измерения: Маринелли 0,5 и 1 л, Дента 0,1 л. Показаны преимущества по точности относительных коэффициентов самопоглощения, использованных в работе.

The computation method is developed for taking into account of the gamma-rays self-absorption in bulky counting samples by energies 0,1—3 MeV and densities 0,2—2 g/cm³ typical in radioecology. The experimental confirmation of computations is obtained for standard measuring geometries — Marinelli 0,5 and 1 l, Denta 0,1 l. The precision advantages of relative coefficients of self-absorption used are pointed out.

Одна из основных задач радиационного контроля окружающей среды состоит в обнаружении и измерении активности γ -излучающих нуклидов в различных объектах среды. Такие измерения выполняют, как правило, отбирая пробы материала объекта с последующим приготовлением из этих проб счетного образца и измеряя его активность на радиометрической установке на основе полупроводникового или сцинтилляционного гамма-спектрометра.

На гамма-спектрометре обычно непосредственно измеряется число импульсов в пиках полного поглощения (ППП) энергии γ -квантов, характерных для измеряемого радионуклида. Так как удельная активность материалов окружающей среды невелика, то получить заметный эффект при регистрации γ -излучения от счетного образца можно только тогда, когда счетный образец представляет собой массивный объемный источник γ -излучения. В этом случае γ -кванты прежде чем попасть в детектор проходят слой материала источника и могут поглотиться или потерять часть энергии. Из-за этого эффекта, называемого самопоглощением, уменьшается число импульсов, зарегистрированных в ППП. Количественно этот эффект учитывается коэффициентом самопоглощения объемного источника, определяемым как отношение числа импульсов в ППП от поглощающего источника к числу импульсов от такого же источника при тех же условиях измерения, но в отсутствие самопоглощения.

Счетные образцы готовят различной геометрической формы в соответствии со спецификой эксперимента (индивидуальная геометрия). С точки зрения обеспечения единства измерений предпочтительней пользоваться существующими стандартными геометрическими формами объемных источников. Такими формами являются сосуды: Маринелли емкостью 1 л (М 1 л); Маринелли — 0,5 л; (М 0,5 л); Дента — 0,1 л (Д 0,1 л) — стандартные геометрии. Счетный образец из грунта плотностью 1,5 г/см³ в геометрии М 1 л, содержащий ¹³⁷Cs, образует в ППП энергии 0,662 МэВ на 16 % меньше импульсов, чем в отсутствие самопоглоще-

ния. Этот пример показывает, что правильность учета эффекта самопоглощения в объемных источниках существенна для получения достоверных результатов радиационного контроля окружающей среды. Коэффициент самопоглощения, кроме зависимости от формы, размеров и расположения источника относительно детектора (от геометрии измерения), зависит и от материала (элементного (химического) состава и плотности) объемного источника.

В настоящей работе выполнено расчетное и экспериментальное исследование эффекта самопоглощения γ -квантов в объемных образцах стандартных геометрий для энергетического диапазона 0,1—3 МэВ и плотности материала источника 0,2—2 г/см³.

Задача практической гамма-спектрометрии проб состоит в определении активности радионуклидов, идентифицированных в счетных образцах. Для этого регистрируется число импульсов в единицу времени $S_m(E_i)$ — скорость счета (отклик) в ППП данной энергии E_i от источника с материалом m и неизвестной активностью A_m радионуклида в фиксированной геометрии измерения. На практике применяются два способа определения A_m по измеренным откликам $S_m(E_i)$. Один из них — компарирование счетного образца относительно меры активности того же радионуклида, когда в той же геометрии, что и для счетного образца, измеряется отклик $S_M(E_i)$ от меры — объемного источника с материалом M и известной активностью A_M , с которым сравнивается отклик $S_m(E_i)$ от счетного образца:

$$A_m = A_M \frac{S_m(E_i) k_M(E_i)}{S_M(E_i) k_m(E_i)}, \quad (1)$$

где $k_m(E_i)$ и $k_M(E_i)$ — коэффициенты самопоглощения γ -квантов с энергией E_i соответственно в счетном образце и мере.

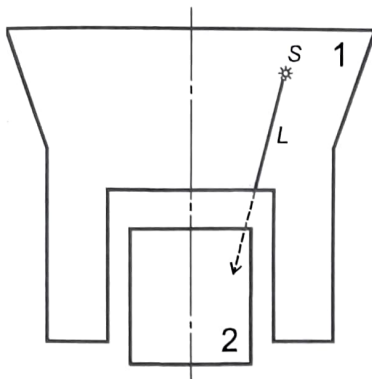


Схема геометрии гамма-спектрометрических измерений:

1 — объемный γ -источник; 2 — кристалл детектора

Во втором способе известна эффективность регистрации гамма-спектрометра ϵ_M , определенная с помощью градуировочных мер с материалом M в диапазоне энергии γ -квантов, включающем монолинии E_i измеряемого радионуклида. Измерение отклика $S_m(E_i)$ от счетного образца при этом проводится в стандартной геометрии, в которой гамма-спектрометр аттестован по эффективности регистрации $\epsilon_M(E_i)$. Эта величина выражается числом импульсов в ППП энергии E_i от градуировочной меры, отнесенным к полному числу γ -квантов с этой энергией, испущенных мерой за время измерения. В этом случае

$$A_m = \frac{S_m(E_i)}{\epsilon_M(E_i)\eta(E_i)} \frac{k_M(E_i)}{k_m(E_i)}, \quad (2)$$

где $\eta(E_i)$ — квантовый выход (абсолютная интенсивность) монолинии E_i радионуклида.

Относительные коэффициенты самопоглощения $k_{M/m}(E_i) = k_M(E_i)/k_m(E_i)$ в (1) и (2) отличаются от единицы тем больше, чем значительнее различие самопоглощения в материалах счетного образца и соответствующей меры: меры сравнения в (1) или градуировочной меры в (2). Из (1) и (2) следует, что от корректности определения относительных коэффициентов самопоглощения непосредственно зависит правильность определения активности объемных источников. Большое разнообразие материалов объемных источников и геометрий измерения, встречающихся в практической гамма-спектрометрии, делают невозможным учет самопоглощения только экспериментальными методами и требуют привлечения для этого расчетных методов. Один из наиболее эффективных методов расчета коэффициентов самопоглощения объемных источников основан на следующих соображениях. Для их пояснения на рисунке схематически представлена геометрия измерений с осесимметричным объемным источником, соосным с цилиндрическим кристаллом детектора. Принцип расчета состоит в том, что объемный источник рассматривается как совокупность точечных источников в его объеме, дающих элементарные вклады в полную скорость счета в ППП. Полное число импульсов и скорость счета в ППП пропорциональны интегральной вероятности вызвать импульс в ППП при равновероятном испускании γ -кванта из каждой точки S в объеме источника (см. рисунок). Поэтому коэффициент самопоглощения равен отношению интегральных по объему источника вероятностей вызвать импульс в ППП при наличии и отсутствии поглощения в источнике. Для его расчета принимается модель, согласно которой вероятность вызвать импульс в ППП для

γ -кванта, испущенного в любой точке S , можно представить в виде произведения вероятностей следующих трех независимых событий [1]:

- 1) γ -квант попадает в рабочую зону детектора — кристалл 2 (см. рисунок);
- 2) γ -квант испытывает взаимодействие любого вида с материалом рабочей зоны, кроме когерентного рассеяния;
- 3) в результате взаимодействия γ -квант полностью теряет энергию в материале рабочей зоны и вызывает импульс в ППП.

В этой модели вероятности событий 2) и 3) не связаны с поглощающими свойствами материала объемного источника и одинаковы для всех точек S в его объеме. Поэтому они выпадают из отношения интегральных вероятностей, дающего коэффициент самопоглощения. Коэффициент самопоглощения объемного источника оказывается равен отношению только интегральных по объему вероятностей события 1) в двух случаях: при наличии и отсутствии поглощения в источнике. Эта особенность принятой модели позволяет исключить неопределенные внутренние характеристики детектора.

С другой стороны, формулы (1), (2) содержат отношения $k_M(E_i)/k_m(E_i) = k_{M/m}(E_i)$ коэффициентов самопоглощения некоторой меры M и счетного образца m . Относительные коэффициенты самопоглощения $k_{M/m}(E_i)$ имеют важное преимущество перед абсолютными коэффициентами самопоглощения $k_M(E_i)$ и $k_m(E_i)$. Использование одинаковых геометрий измерения для меры (стандартного источника) и счетного образца позволяет компенсировать в $k_{M/m}(E_i)$ не исключенные систематические погрешности, одинаковым образом содержащиеся в числителе $k_M(E_i)$ и знаменателе $k_m(E_i)$ этой величины и связанные с неточным знанием геометрии измерений или параметров взаимодействия γ -квантов с сосудом источника, оболочкой детектора и т. д. При этом оптимальная плотность материала стандартного источника (стандартного материала) лежит приблизительно в центре диапазона плотностей, типичных для данной области применений гамма-спектрометрии. Например, для материалов с плотностями 0,2—2 г/см³, характерных в радиозологии, таким стандартным материалом служит вода.

В МИФИ (В. С. Трошиным, М. П. Паниным, В. В. Смирновым) была разработана специальная компьютерная программа «Самопоглощение объемных источников («СОБИС»)». В ней по методу Монте-Карло определяются указанные выше интегральные по объему источника вероятности попадания γ -кванта из источника в кристалл, которые позволяют рассчитать $k_m(E_i)$ — коэффициент самопоглощения в источнике с известным материалом m для конкретных энергий E_i . Для выполнения расчетов в программу необходимо ввести, во-первых, параметры геометрии измерения: форму источника (предусмотрены формы заданных размеров усеченного конуса, цилиндра и сосуда Маринелли); размеры кристалла детектора; расстояния от кристалла до источника (по оси симметрии). Во-вторых, следует задать массовые доли компонентов элементного состава и плотность ρ материала источника. По ним и табличным значениям массовых коэффициентов ослабления $(\mu/\rho)_{\text{tot}, t \rightarrow \infty}$ для элементов [2], содержащихся в программе, рассчитывается обычным образом [3] линейный коэффициент ослабления γ -квантов $\mu_m(E_i)$ в материале m источника. При этом его значение для любой заданной энергии E_i определяется в программе с помощью аппроксимации табличных значений по энергии. После задания числа историй, разыгрываемых по методу Монте-Карло, и энергии E_i программа готова к работе. Результатом расчета являются значения коэффициентов самопоглощения $k_b(E_i)$ для воды и $k_m(E_i)$ для

заданного материала m счетного образца, их отношения $k_{B/m}(E_i)$, а также случайные погрешности расчета этих величин.

Вероятность попадания γ -кванта в кристалл уменьшается из-за самопоглощения в $\exp(\mu L)$ раз, где μ — линейный коэффициент ослабления в материале счетного образца, L — длина пути в нем для данной истории (см. рисунок). Влияние свойств материала на коэффициент самопоглощения k , рассчитанный по программе «СОБИС», выражается его зависимостью только от μ : $k = k(\mu)$. Поэтому для получения коэффициентов самопоглощения достаточно иметь эту зависимость и знать значение μ в каждом конкретном случае, например, из расчета по таблицам [2], как указано выше. При этом расчет k на компьютере не нужен. Ниже приведены экспоненциальные выражения, аппроксимирующие расчетные зависимости $k(\mu)$ в случаях геометрии измерения М 0,5 л — $k_{M0,5}(\mu)$ и М 1 л — $k_{M1}(\mu)$ с кристаллом $\varnothing 6,3 \times 6,3$ см: $k_{M0,5}(\mu) = \exp(-1,23\mu)$; $k_{M1}(\mu) = \exp(-1,61\mu)$. Они охватывают диапазон энергий 0,1—3 МэВ и область плотностей 0,2—2 г/см³, достаточных для целей радиозекологии. Кроме того оказалось, что в геометрии измерений Д 0,1 л кривая $k_{D0,1}(\mu)$ совпадает со случаем М 1 л в пределах погрешности аппроксимации менее 2 % при всех указанных энергиях и плотностях.

Применимость результатов расчета по программе «СОБИС» в практической гамма-спектрометрии нуждается в экспериментальном подтверждении, поскольку расчет носит модельный характер. С этой целью было выполнено экспериментальное тестирование расчетов, реализуемых по программе «СОБИС». Были изготовлены четыре объемных γ -источника, содержащих различные материалы с радионуклидом ¹⁵²Eu в стандартных сосудах Маринелли объемом 1 л. Неравномерность распределения радионуклида по объему была менее 1 %. В одном источнике материалом была вода (плотность 1 г/см³), а в трех других содержались разные сыпучие материалы с известными элементными составами, условно обозначаемые как СМ, Д и С. Их насыпные плотности составляли: $\rho_{SM} = 0,71$ г/см³, $\rho_D = 0,84$ г/см³, $\rho_C = 1,5$ г/см³. Были выполнены многократные (не менее трех) измерения скоростей счета в ППП для ряда монолиний ¹⁵²Eu в водяном источнике (В) и источниках с сыпучими материалами (СМ, Д и С) при тщательном соблюдении одинаковой геометрии всех измерений. Измерения проводили на гамма-спектрометри-

ческой установке с ППП ДГДК-50. Активность ¹⁵²Eu составляла от 10³ до 10⁵ Бк в разных источниках. Измеренные скорости счета в ППП энергий E_i использовали для получения экспериментальных значений относительных коэффициентов самопоглощения $k_{B/CM}(E_i)$, $k_{B/D}(E_i)$ и $k_{B/C}(E_i)$ для сыпучих источников относительно водяного. С этой целью каждый из указанных коэффициентов с помощью формулы (1) представляли в виде

$$k_{B/m}(E_i) = \frac{k_B(E_i)}{k_m(E_i)} = \frac{S_B(E_i) A_m}{S_m(E_i) A_B} = \frac{S_B(E_i) / S_B(E_0)}{S_m(E_i) / S_m(E_0)} k_{B/m}(E_0), \quad (3)$$

где $S_B(E_i)$ и $S_m(E_i)$ — скорости счета в ППП энергии E_i от водяного (В) и сыпучих (m вместо СМ, Д и С) источников с активностями соответственно A_B и A_m . Отношение A_m / A_B в конечном выражении в (3) представлено как $k_{B/m}(E_0) \times S_m(E_0) / S_B(E_0)$ из (1) для наибольшей энергии γ -квантов $E_0 = 1,408$ МэВ при измеренных откликах $S_m(E_0)$ и $S_B(E_0)$ во избежание больших систематических погрешностей значений $k_{B/m}(E_i)$ из-за неопределенности активностей A_m и A_B . Отношения измеренных откликов $S_B(E_i) / S_B(E_0)$ и $S_m(E_i) / S_m(E_0)$ из (3) усредняли при определенных энергиях E_i по многократным измерениям с каждым из четырех материалов, чтобы уменьшить случайную погрешность этих величин. Полученные средние значения указанных отношений для воды и сыпучих материалов использовали вместо $S_B(E_i) / S_B(E_0)$ и соответственно $S_m(E_i) / S_m(E_0)$ при определении экспериментальных значений относительных коэффициентов $k_{B/m}(E_i)$ по формуле (3). При этом в (3) для трех материалов СМ, Д и С в используемой геометрии измерений подставляли: $k_{B/CM}(E_0) = 0,974$; $k_{B/D}(E_0) = 0,983$; $k_{B/C}(E_0) = 1,026$ как оцененные по результатам расчетов для трех различных моделей, в том числе и «СОБИС», различающиеся менее, чем на 0,5 %. При таком определении экспериментальных значений коэффициентов $k_{B/m}(E_i)$ каждому материалу соответствовал свой набор энергий E_i монолиний ¹⁵²Eu. Это вызвано отбраковкой тех монолиний, для которых многократные измерения с водой или данным сыпучим материалом имели разброс усредняемых отношений откликов более 3 % от среднего значения. Для отобранных таким образом энергий E_i и геометрии М 1 л с кристал-

Таблица 1

Расчетные и аппроксимированные экспериментальные значения коэффициентов самопоглощения

E_i , МэВ	$k_{B/CM}(E_i)$			$k_{B/D}(E_i)$			$k_{B/C}(E_i)$		
	Расчет	Аппроксимация эксперимента	δ , %	Расчет	Аппроксимация эксперимента	δ , %	Расчет	Аппроксимация эксперимента	δ , %
0,122	0,934	0,932	0,2	0,956	0,956	0	1,216	1,206	0,8
0,245	0,946	0,945	0,1	0,964	0,964	0	1,071	1,066	0,5
0,344	0,952	0,951	0,1	0,968	0,968	0	1,054	1,051	0,3
0,444	—	—	—	0,973	0,971	0,2	1,046	1,044	0,2
0,779	0,965	0,965	0	0,976	0,977	—0,1	—	—	—
0,867	—	—	—	0,978	0,978	0	1,033	1,032	0,1
0,964	0,968	0,969	—0,1	0,979	0,980	—0,1	—	—	—
1,112	—	—	—	0,980	0,981	—0,1	—	—	—
1,408	0,974	0,974	0	0,983	0,983	0	1,026	1,026	0

Расчетные значения коэффициентов самопоглощения в стандартных образцах, типичных для радиозоологии

E_i , МэВ	$k_{в/м}(E_i)$, геометрия Маринелли 1 л, для						$k_{в/м}(E_i)$, геометрия Маринелли 0,5 л, для					
	растительности плотностью, г/см ³			почвы плотностью, г/см ³			растительности плотностью, г/см ³			почвы плотностью, г/см ³		
	0,4	0,7	0,85	0,8	1,2	1,6	0,4	0,7	0,85	0,8	1,2	1,6
0,238	0,877	0,933	0,961	0,946	1,021	1,098	0,905	0,948	0,970	0,959	1,016	1,075
0,295	0,886	0,937	0,964	0,949	1,018	1,089	0,912	0,952	0,972	0,961	1,014	1,068
0,352	0,892	0,941	0,966	0,951	1,016	1,083	0,917	0,955	0,974	0,963	1,012	1,063
0,583	0,910	0,951	0,971	0,959	1,013	1,067	0,931	0,962	0,978	0,969	1,010	1,051
0,662	0,914	0,953	0,973	0,961	1,012	1,064	0,934	0,964	0,979	0,970	1,009	1,048
0,965	0,927	0,960	0,977	0,967	1,010	1,054	0,945	0,970	0,983	0,975	1,008	1,041
1,461	0,940	0,968	0,981	0,973	1,009	1,045	0,955	0,975	0,986	0,980	1,007	1,034
2,614	0,955	0,975	0,986	0,980	1,007	1,034	0,966	0,981	0,989	0,985	1,005	1,026

лом $\varnothing 4 \times 4$ см рассчитаны коэффициенты самопоглощения $k_{в/м}(E_i)$ в трех сыпучих источниках относительно водяного. Зависимости экспериментальных значений $k_{в/м}(E_i)$ аппроксимировали гладкими кривыми экспоненциального вида по методу наименьших квадратов, проведенными при энергии $E_0 = 1,408$ МэВ через точки $k_{в/м}(E_0)$ для каждого из трех сыпучих материалов.

В табл. 1 указаны расчетные и аппроксимированные экспериментальные значения коэффициентов самопоглощения относительно воды $k_{в/м}(E_i)$ при энергиях E_i , отобранных для воды и каждого из трех материалов СМ, Д и С после многократных измерений. Для сравнения расчетных значений с экспериментальными в табл. 1 приведены их относительные отклонения в процентах: $\delta = 100 [k_{в/м}(E_i)_p - k_{в/м}(E_i)_{эксп}] / k_{в/м}(E_i)_p$.

Из табл. 1 видно, что по абсолютной величине эти относительные отклонения δ меньше 1 % для всех трех материалов и тем самым они согласуются с разбросом откликов (до 3 %) от их среднего значения при многократных измерениях с каждым материалом для любой из отобранных энергий E_i . Таким образом, получено экспериментальное подтверждение результатов расчета в геометрии измерений М 1 л для трех данных материалов при энергиях γ -квантов 0,122—1,408 МэВ, что свидетельствует о корректности расчетов по программе «СОБИС» в диапазоне энергий 0,1—3 МэВ, характерном для радиозоологии.

В программе «СОБИС» специально предусмотрены расчеты коэффициентов самопоглощения для некоторых стандартных веществ, включая растительность (органическое вещество) и почву (грунт), наиболее характерных для радиозоологического контроля. В табл. 2 приведены коэффициенты самопоглощения относительно воды в счетных образцах растительности и почвы с плотностями в практически важных областях при указанных энергиях E_i для радионуклидов ^{137}Cs , ^{40}K , ^{226}Ra и ^{232}Th . Все значения в табл. 2 рассчитаны

для геометрий измерения М 1 л и М 0,5 л с кристаллом $\varnothing 6,3 \times 6,3$ см. Относительные коэффициенты самопоглощения для геометрий Д 0,1 л и М 1 л совпадают по расчету в пределах 0,2 %.

В работе получены следующие результаты расчетов по программе «СОБИС», применимые в радиозоологии. Для часто встречающихся на практике геометрий измерения М 0,5 л и М 1 л рассчитаны и аппроксимированы явными функциями зависимости коэффициентов самопоглощения от линейного коэффициента ослабления μ в источнике. Они позволяют по известному μ для любого материала определить самопоглощение в источнике без дальнейших расчетов. Для тех же геометрий измерения рассчитаны коэффициенты $k_{в/м}(E_i)$ в практически важных случаях счетных образцов растительности и почвы. Для геометрий измерений Д 0,1 л и М 1 л расчетные коэффициенты $k_{в/м}(E_i)$ совпали в пределах погрешности расчета. Отмечена резкая зависимость $k_{в/м}$ от химического состава материала m в области низких энергий $E_i < 0,2$ МэВ, вызванная увеличением фотопоглощения. Так, в геометрии М 1 л (с ППД) для блочного графита (Г) и материала из железа (Fe) той же плотности $\rho_r = 1,67$ г/см³ [3] расчет при $E_i = 0,122$ МэВ и 0,245 МэВ дает $k_{в/Fe}(0,122) / k_{в/Г}(0,122) = 1,234$ и $k_{в/Fe}(0,245) / k_{в/Г}(0,245) = 1,01$, т. е. первое отношение на 22 % больше.

В эксперименте и подготовке статьи участвовали Т. П. Берлянд и Н. А. Орешкина.

ЛИТЕРАТУРА

1. Moens L. e. a. // Nucl. Instr. Meth. — 1981. — V. 187. — P. 451.
2. Сторм Э., Изразль Х. Сечения взаимодействия гамма-излучения. — М.: Атомиздат, 1973.
3. Машкович В. П., Кудрявцева А. В. Защита от ионизирующих излучений: Справочник. — М.: Энергоатомиздат, 1995.