

**ФИЗИЧЕСКИЕ ПРИБОРЫ ДЛЯ ЭКОЛОГИИ,  
МЕДИЦИНЫ, БИОЛОГИИ**

УДК 539.16.08+546.795

**ИЗМЕРЕНИЕ АКТИВНОСТИ ТОРИЯ ПО ЕГО ДОЧЕРНИМ  
ПРОДУКТАМ РАСПАДА НА МНОГОДЕТЕКТОРНОМ СПЕКТРОМЕТРЕ  
ГАММА-СОВПАДЕНИЙ**

© 2008 г. Н. М. Антович\*, Н. Свркога\*\*, П. Вукотич\*, С. К. Андрухович,  
А. В. Берестов, С. Н. Гаркуша, Ф. Е. Зязюля

*Институт физики им. Б.И. Степанова НАН Беларуси  
Республика Беларусь, 220072, Минск, просп. Независимости, 68*

*\* Университет Черногория, Естественно-математический факультет  
Черногория, 81000, Подгорица, Петински пут, 66*

*\*\* Экологический центр Черногория  
Черногория, 81000, Подгорица, Радомира Ивановича пут, 2*

Поступила в редакцию 16.11.2007 г.

Метод регистрации тория по его дочерним радионуклидам, апробированный на шестикристалльных 4π-спектрометрах γ-совпадений ПРИПЯТЬ, позволяет выполнять измерения крупнообъемных образцов любой формы с более высокой чувствительностью и меньшим временем измерения по сравнению с регистрацией HPGe-спектрометром, сопоставимым по стоимости.

PACS: 29.30.-h, 29.30.Kv, 07.88.+Y

**ВВЕДЕНИЕ**

Так как общие запасы тория в 3–4 раза превышают запасы урана в земной коре, а в небольшом количестве он присутствует практически везде, измерение активности  $^{232}\text{Th}$  представляет интерес с экологической точки зрения.

Радиоактивный ряд  $^{232}\text{Th}$ , содержащий 10 дочерних радионуклидов, в результате цепочки распадов ( $7\alpha$ -,  $5\beta$ -распадов, сопровождающихся  $\gamma$ -излучением) заканчивается стабильным изотопом свинца  $^{208}\text{Pb}$  [1]. Активность  $^{232}\text{Th}$  в случае, если неизвестно, находится ли он в радиоактивном равновесии с дочерними продуктами распада, на полупроводниковом  $\gamma$ -спектрометре обычно определяется по наиболее интенсивной  $\gamma$ -линии  $^{228}\text{Th}$  (сопровождающей  $\beta$ -распад  $^{228}\text{Ac}$ ) с энергией 911.1 кэВ (0.258) [2] или по нескольким линиям (например, с энергией  $E_\gamma = 338.4$  кэВ (0.113) и 911.1 кэВ (0.258) [3]). Это обусловлено стремлением избежать погрешностей, связанных с возможной эманацией  $^{220}\text{Rn}$  из измеряемого образца. После  $\alpha$ -спектрометрии эта методика используется наиболее часто. Время измерений составляет  $\geq 10000$  с.

Сказанное выше относится в основном к случаю регистрации излучения одним детектором. Если при распаде ядра испускается несколько частиц одновременно и регистрация осуществляется несколькими детекторами, возможно использование методик, основанных на регистрации совпадений. Такие методики позволяют ча-

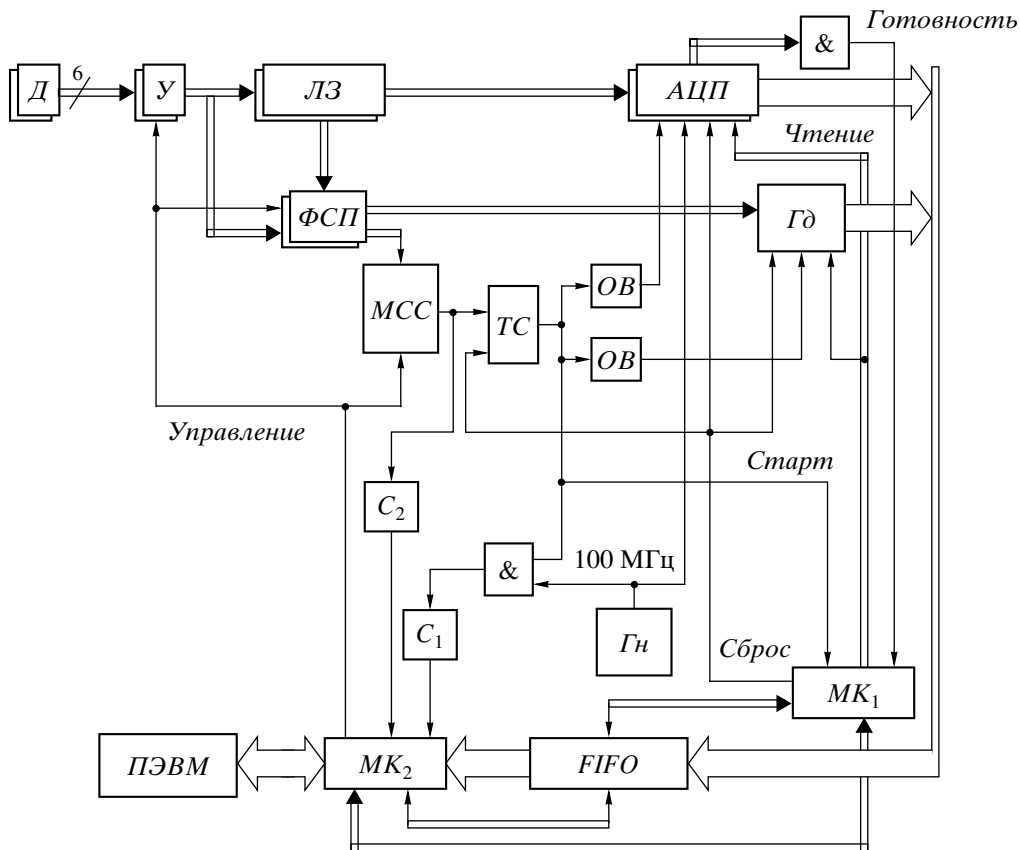
сто снизить нижний предел регистрации путем улучшения отношения сигнал/фон [4].

Эффективность регистрации каскада пропорциональна произведению эффективностей регистрации отдельных квантов. Поэтому для измерений с использованием методик, основанных на совпадениях, многодетекторный спектрометр должен иметь высокую эффективность регистрации отдельных детекторов и высокую геометрическую эффективность регистрации (близкую к 4π).

Спектрометрами такого типа являются  $\gamma$ -спектрометры серии ПРИПЯТЬ [5]. В работе [6] было показано, что при соответствующей технической и методической доработке спектрометр ПРИПЯТЬ может быть эффективно использован для определения концентрации продуктов распада естественных радионуклидов и, в частности, изотопов радона методом регистрации совпадений  $\gamma$ -квантов, испускаемых такими продуктами распада, как  $^{214}\text{Bi}$  и др. Ниже описаны новая система регистрации для  $\gamma$ -спектрометра ПРИПЯТЬ-2П и метод измерения активности  $^{232}\text{Th}$  и его дочерних радионуклидов на спектрометре.

**СПЕКТРОМЕТР  $\gamma$ -СОВПАДЕНИЙ ПРИПЯТЬ**

Измерительная камера шестикристалльного скintилляционного 4π-спектрометра многократных  $\gamma$ -совпадений ПРИПЯТЬ представляет собой куб со стороной 175 мм, в каждую из граней которого вписан скintилляционный детектор на осно-



**Рис. 1.** Общая схема системы регистрации спектрометра ПРИПЯТЬ-2П. Д – детекторы; У – усилители; ЛЗ – линии задержки; АЦП – преобразователи заряд–код; ФСП – формирователи со следящим порогом; МСС – мажоритарная схема совпадений; ОВ – одновибратор; Гд – годоскоп; ТС – триггер флага события; С<sub>1</sub> – делитель частоты счетчика мертвого времени; С<sub>2</sub> – делитель частоты счетчика событий; Гн – генератор; МК<sub>1</sub> и МК<sub>2</sub> – микроконтроллеры; FIFO – буферная память; ПЭВМ – персональная ЭВМ.

ве кристалла NaI(Tl) размером 150 × 100 мм и ФЭУ-49Б (сцинтилляционный блок БДЭГ-39 с улучшенными амплитудно-временными характеристиками, согласно [7]) или ФЭУ-173-1. Энергетическое разрешение новых детекторов, используемых при комплектации, составляет 8–12% по  $\gamma$ -линии  $^{137}\text{Cs}$  (662 кэВ). Рабочий объем спектрометра позволяет без предварительной подготовки проб проводить измерения образцов произвольной формы объемом до 5 л. Полный телесный угол регистрации  $\sim 0.7$  от 4 $\pi$ . Эффективность регистрации  $\gamma$ -линии  $^{137}\text{Cs}$  662 кэВ по фотопику составляет 0.25 и изменяется в пределах чувствительного объема спектрометра для точечного источника не более чем на 10%.

До недавнего времени спектрометр ПРИПЯТЬ применялся в основном для массового экспрессного анализа содержания радионуклидов  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{40}\text{K}$  в образцах различной природы и формы. Спектрометр имеет высокую чувствительность регистрации и способен обнаруживать радионуклиды цезия в воде на уровне 10 Бк/л за время измерения  $\leq 1$  мин.

В настоящее время для спектрометра разработаны новая система регистрации и методики выполнения измерений. Новая система регистрации (рис. 1) имеет программно-регулируемые (для каждого спектрометрического канала) коэффициенты усиления, пороги регистрации, сдвиг нулевой линии, кратность совпадений, что позволяет перестраивать диапазон регистрации в широких пределах. В стандартной настройке энергетический диапазон спектрометра составляет 0.2–3 МэВ.

Конструктивно система регистрации состоит из шести блоков “Спектрометрический канал” и одного блока “Управление спектрометрическими каналами”. Система может быть встроена в системный блок компьютера и использует для питания напряжения +12 В и –12 В от блока питания компьютера. Управление и обмен информацией между блоком управления и компьютером осуществляется через COM и LPT порты.

Принцип работы схемы регистрации следующий. Импульсы тока, поступающие с датчиков, усиливаются быстрым усилителем У с программно-управляемым коэффициентом усиления. Сиг-

нал с выхода усилителя анализируется двумя устройствами: формирователем со следящим порогом *ФСП* и преобразователем заряд-код *АЦП*. На *АЦП* сигнал с усилителя поступает через аналоговую линию задержки *ЛЗ*. *ЛЗ* имеет десять промежуточных выводов, с одного из них берется задержанный сигнал для *ФСП*. Сигналы с *ФСП* подаются на мажоритарную схему совпадений *МСС*, на выходе которой формируются строб-сигналы для *АЦП* и годоскопа, фиксирующего одновременно срабатывания датчиков.

По окончании преобразования всеми преобразователями выставляется сигнал готовности, и программа управления микроконтроллера *МК<sub>1</sub>* записывает данные из *АЦП*, отмеченные в годоскопе, в буферную память *FIFO*. Программа управления микроконтроллера *МК<sub>2</sub>* передает данные из *FIFO* в основную программу компьютера.

При наличии в сигнале детектора шумовых коротких импульсов возможно их подавление в спектре при помощи дискриминации сигнала по длительности. Дискриминация проводится дополнительным регистром годоскопа, фиксирующим наличие импульса на входе через контрольный интервал времени. Если импульса нет, то событие отбрасывается и осуществляется сброс всех *АЦП* и годоскопа.

Информация по каждому из зарегистрированных событий поступает в компьютер в виде числа и номеров сработавших детекторов, а также энергий  $\gamma$ -квантов, вызвавших совпадение. Разрешающее время совпадений 40 нс, кратность совпадений 1–6.

С помощью программного обеспечения поступающая с детекторов информация формируется в виде суммарных (по детекторам) одномерных интегральных спектров с кратностью от 1 до 6. Для большинства практических применений (например, измерение ЕРН в стройматериалах) выбран режим, при котором формируются три суммарных кратных спектра: кратности 1, 2 и спектр с окном кратности 3–6.

Полученные таким образом спектры можно обрабатывать в спектрометрическом режиме с использованием процедур обработки линейчатых спектров или – для случая известного изотопного состава – в радиометрическом режиме с помощью матричного метода и использования данных, полученных при измерении эталонов соответствующих изотопов различной плотности и массы.

#### РЕГИСТРАЦИЯ $^{232}\text{Th}$ ПО ЕГО ДОЧЕРНИМ ПРОДУКТАМ РАСПАДА

В радиоактивном ряду  $^{232}\text{Th}$  одновременное испускание нескольких квантов происходит при распаде  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{228}\text{Ac}$ ,  $^{228}\text{Th}$ ,  $^{224}\text{Ra}$ ,  $^{212}\text{Bi}$ ,  $^{208}\text{Tl}$  [1]. Однако квантовые выходы каскадов имеют значи-

тельную величину только для  $^{208}\text{Tl}$ . Практически все  $\gamma$ -излучение этого изотопа испускается каскадными переходами с множественностью 2, 3 и 4 с испусканием в конце каскада кванта 2615 кэВ. Наиболее сильными среди двойных каскадов  $^{208}\text{Tl}$  являются 583 + 2615 кэВ (0.175) и 861 + 2615 кэВ (0.044), среди тройных – 511 + 583 + 2615 кэВ (0.078) и 277 + 583 + 2615 кэВ (0.022). В скобках указаны квантовые выходы каскадов.  $^{228}\text{Th}$ , образующийся при  $\beta$ -распаде  $^{228}\text{Ac}$ , также имеет сложную структуру уровней, разрядка которых сопровождается каскадными переходами. Однако наиболее интенсивные двойные каскады завершаются переходами с уровня 58 кэВ, которые лежат ниже порога регистрации спектрометра ПРИПЯТЬ. Интенсивность остальных каскадов невелика.

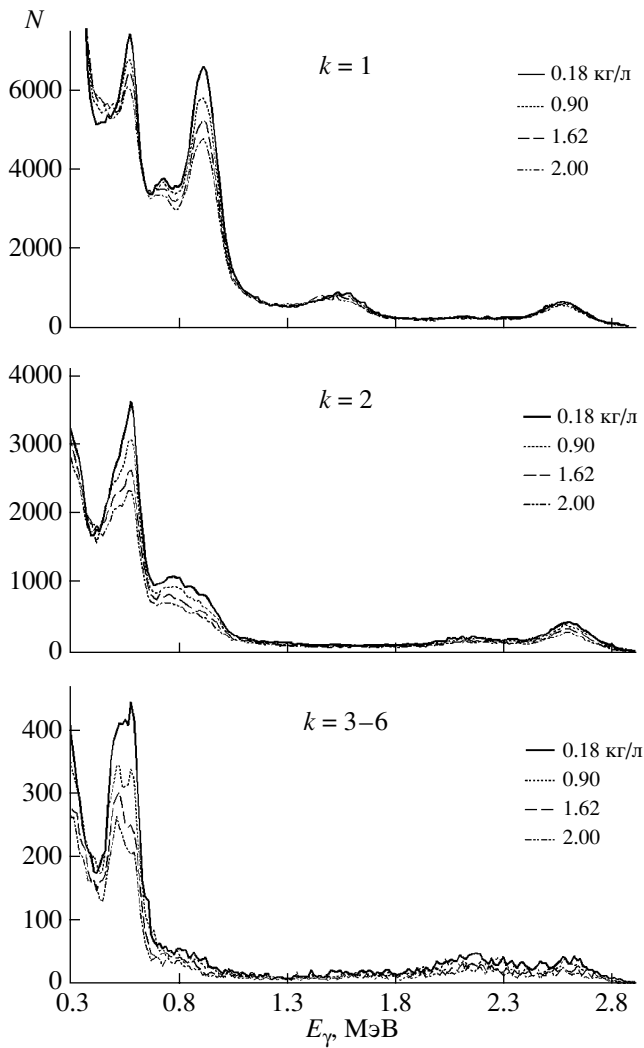
Исходя из вышесказанного, можно выделить несколько наиболее подходящих возможностей определения активности тория в образцах на спектрометре ПРИПЯТЬ.

– Регистрация  $\gamma$ -линии  $^{228}\text{Th}$  ( $\beta$ -распад  $^{228}\text{Ac}$ ) с энергией 911 кэВ (в спектре однократных событий). Учитывая энергетическое разрешение спектрометра ПРИПЯТЬ, данная линия представляет собой наложение неразрешимых  $\gamma$ -линий со следующими энергиями: 911 (0.258), 965 (0.05) и 969 (0.158) кэВ. Суммарный квантовый выход вышеуказанных линий, приходящийся на один распад атома  $^{232}\text{Th}$ , составляет 0.47. К данной линии также подмешивается  $\gamma$ -линия  $^{208}\text{Pb}$  ( $\beta$ -распад  $^{208}\text{Tl}$ ) с энергией 860 (0.045) кэВ.

– Регистрация  $\gamma$ -линии  $^{208}\text{Pb}$  ( $\beta$ -распад  $^{208}\text{Tl}$ ) с энергией 583 кэВ, прежде всего, в режиме двойных и тройных совпадений с идущими в каскаде  $\gamma$ -линиями. В каскаде с данной линией испускаются кванты со следующими энергиями: 2615, 511, 277 и 763 кэВ. Следует также отметить, что  $\gamma$ -линии с энергиями 511 и 583 кэВ практически не разрешимы в режимах двух- и трехкратных совпадений (рис. 2). Таким образом, суммарный квантовый выход данной линии составляет 0.385.

– Регистрация  $\gamma$ -линии  $^{208}\text{Pb}$  ( $\beta$ -распад  $^{208}\text{Tl}$ ) с энергией 2615 кэВ, прежде всего, также в режиме двойных и тройных совпадений с идущими в каскаде  $\gamma$ -линиями. В каскаде с данной линией испускается все  $\gamma$ -излучение. Квантовый выход данной линии составляет 0.359.

С точки зрения  $\gamma$ -спектрометрии, удобной линией для регистрации тория является  $\gamma$ -линия  $^{212}\text{Bi}$  ( $\beta$ -распад  $^{212}\text{Pb}$ ) с энергией 239 кэВ в силу высокой эффективности регистрации детекторов в данном энергетическом диапазоне и высокого квантового выхода 0.47. Однако данная линия находится на границе энергетического диапазона, регистрируемого спектрометром ПРИПЯТЬ, и частично обрезается. Небольшое плавание порогов может привести к нестабильности результатов.

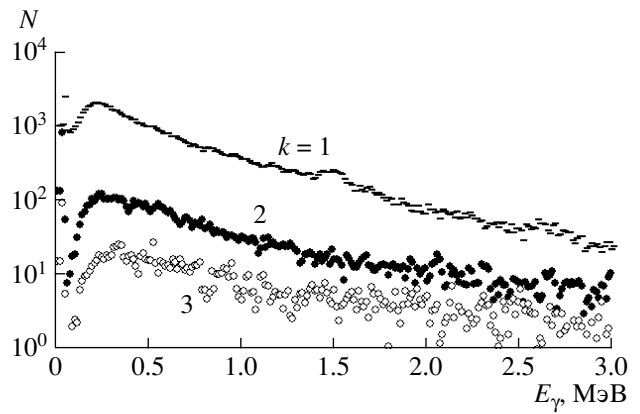


**Рис. 2.** Спектры объемных образцов мер с <sup>232</sup>Th (800 Бк) различной плотности, полученные спектрометром ПРИПЯТЬ в режимах исследуемых совпадений *k* (*t* = 1000 с).

На рис. 2 приведены спектры образцов мер <sup>232</sup>Th объемом 1 л с активностью 800 Бк, упакованных в пластиковые герметичные контейнеры, с различной плотностью наполнителя (0.18, 0.90, 1.62 и 2.00 кг/л), полученные на спектрометре ПРИПЯТЬ с энергетическим разрешением по  $\gamma$ -линии <sup>137</sup>Cs (662 кэВ) 15% в следующих режимах совпадений: *k* = 1, 2 и 3–6. Спектры фона, полученные на данном спектрометре в соответствующих режимах совпадений, приведены на рис. 3.

В таблице приведены расчетные значения предела обнаружения  $A_{\min}^{232\text{Th}}$  по упомянутым выше  $\gamma$ -линиям с энергиями 583, 911 и 2615 кэВ, оцененные по формуле

$$A_{\min} = \frac{m\sqrt{N_{\text{ф}}}}{\varepsilon\sqrt{t}}, \quad (1)$$



**Рис. 3.** Спектр фона, полученный спектрометром ПРИПЯТЬ в режимах исследуемых совпадений *k* (*t* = 4968 с).

где  $\varepsilon$  – эффективность регистрации фотопика;  $N_{\text{ф}}$  – скорость счета фона в области фотопика; *t* – время измерения исследуемого образца; *m* = 2 – число среднеквадратичных отклонений, обусловленных статистическими флуктуациями фона (доверительная вероятность  $P = 0.95$ ). Для определения эффективности регистрации спектрометром вышеуказанных  $\gamma$ -линий использовалась образцовая мера с песком плотностью 1.62 кг/л, объемом 2 л и активностью  $A = 1400$  Бк.

### ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

Несомненным достоинством определения активности <sup>232</sup>Th по  $\gamma$ -линии с энергией 911 кэВ является слабая зависимость результатов от эманации торона (<sup>220</sup>Rn) из образца, поскольку большинство участвующих в наложении  $\gamma$ -линий, за исключением  $\gamma$ -линии с энергией 860 (0.04) кэВ, принадлежит <sup>228</sup>Th, распад которого предшествует распаду <sup>220</sup>Rn в ториевом ряду.

Что касается определения активности <sup>232</sup>Th с помощью  $\gamma$ -линии с энергией 583 кэВ, то, согласно данным таблицы, оптимальным вариантом является режим двукратных совпадений. В режиме *k* = 2 по сравнению с режимом *k* = 1 фоновая скорость счета в области фотопика уменьшается более чем в 14 раз при незначительном увеличении экспериментальной эффективности регистрации данного пика. При этом отношения экспериментальной эффективности регистрации фотопика 583 кэВ и фоновой скорости счета в режиме двукратных совпадений относительно трехкратных совпадений практически эквивалентны, что в силу выражения (1) приводит к увеличению  $A_{\min}$ .

На линии 2615 кэВ оптимальным режимом определения активности тория также является режим двукратных совпадений (см. таблицу). Несмотря на то что суммарная интенсивность каска-

Эффективность регистрации  $\varepsilon$  и нижний предел обнаружения  $A_{\min}^{232}\text{Th}$  в различных режимах измерения  $k$  при доверительной вероятности  $P = 0.95$

$E_\gamma$ , кэВ	$k$	$N_\Phi$ , $\text{с}^{-1}$	Спектрометрический режим ( $t = 1000$ с)		Радиометрический режим ( $t = 100$ с)	
			$\varepsilon \cdot 10^2$	$A_{\min}$ , Бк/кг	$\varepsilon \cdot 10^2$	$A_{\min}$ , Бк/кг
583*	1	20.88	1.33	6.7	15.06	1.9
	2	1.45	1.54	1.5	6.27	1.2
	3	0.25	0.30	3.3	0.63	4.9
911**	1	10.21	4.06	1.5	13.30	1.5
2615	1	0.94	0.81	2.3	2.13	2.8
	2	0.14	0.35	2.1	0.95	2.4
	3	0.06	0.04	17.4	0.07	20.9

\* Наложение неразрешимых на спектрометре ПРИПЯТЬ  $\gamma$ -линий со следующими энергиями: 511 (0.081) и 583 (0.304) кэВ.

\*\* Наложение неразрешимых на спектрометре ПРИПЯТЬ  $\gamma$ -линий со следующими энергиями: 860 (0.045), 911 (0.258), 965 (0.05) и 969 (0.158) кэВ.

дов в режиме  $k = 2$  практически эквивалентна суммарной активности каскадов с участием  $\gamma$ -линии с энергией 583 кэВ, эффективность регистрации детекторов спектрометра в данном энергетическом диапазоне несколько ниже, поэтому и предел обнаружения тория с помощью данной линии выше. Однако стоит отметить, что преимущество линии 2615 кэВ состоит в том, что в данном энергетическом диапазоне практически отсутствуют интенсивные  $\gamma$ -линии, появляющиеся при распаде других естественных радионуклидов ( $^{40}\text{K}$ ,  $^{238}\text{U}$ ) и  $^{137}\text{Cs}$ , которые могут повлиять на результаты определения тория.

Ниже для сравнения приведены результаты регистрации тория с помощью коаксиального HPGe-спектрометра ORTEC-30185-S с относительной эффективностью регистрации 35%. Зависимость эффективности регистрации спектрометра от энергии  $\gamma$ -квантов определялась с помощью мультистандарта в сосуде Маринелли емкостью 0.5 л и плотностью 1 кг/л. При этом эффективность регистрации фотопика 911 кэВ, который использовался для определения активности тория, составила 0.013. Для определения минимальной регистрируемой удельной активности  $A_{\min}$  использовался образец земли в сосуде Маринелли (0.5 л) плотностью 1.2 кг/л и активностью  $940.5 \pm \pm 30.5$  Бк. При этом величина  $A_{\min}$  рассчитывалась стандартным методом ЗМДА (программа [8]) по следующей формуле

$$A_{\min} = 4.5 \frac{1 + \sqrt{1 + 0.888N}}{T_j \varepsilon I}, \quad (2)$$

где  $T_j$  – живое время;  $N$  – число фоновых отсчетов под фотопиком;  $\varepsilon$  – эффективность регистрации;  $I$  – квантовый выход. За время измерения  $t = 11840$  с минимальная регистрируемая удельная

активность  $A_{\min}$  для данного спектрометра составила 2.1 Бк/кг.

Таким образом, сравнение показывает, что регистрация тория спектрометром ПРИПЯТЬ занимает значительно меньшее время (на порядок) по сравнению с регистрацией HPGe-спектрометром.

Из таблицы также видно, что в радиометрическом режиме практически те же значения  $A_{\min}$ , что и в спектрометрическом, можно получить за  $t = 100$  с, что на порядок быстрее. В предельном случае, при определении активности тория на данном спектрометре в радиометрическом режиме по всему регистрируемому энергетическому диапазону (в образце присутствует только торий), за время измерения  $t = 30$  с величина  $A_{\min}$  составила 1 Бк/кг в режиме как однократных, так и двукратных совпадений.

Поскольку для определения экспериментальных эффективностей регистрации спектрометра для вышеуказанных линий использовалась образцовая мера объемом 2 л, то теоретически пределы обнаружения тория можно понизить до 2 раз, используя образцы объемом 5 л.

Описанная методика позволяет оценить минимально детектируемую спектрометром ПРИПЯТЬ активность  $^{232}\text{Th}$  и его дочерних радионуклидов (в том числе торона  $^{220}\text{Rn}$ ) в различных образцах с установившимся радиоактивным равновесием путем измерения суммарных кратных интегральных спектров и может быть использована для определения активности (и удельной активности)  $^{232}\text{Th}$ .

Метод совпадений позволяет измерять активность  $^{232}\text{Th}$  и его дочерних продуктов распада без потери чувствительности в образцах, содержащих также и  $^{137}\text{Cs}$ . Использование описанного метода имеет очевидное преимущество на радиационно-загрязненных территориях, поскольку позволяет

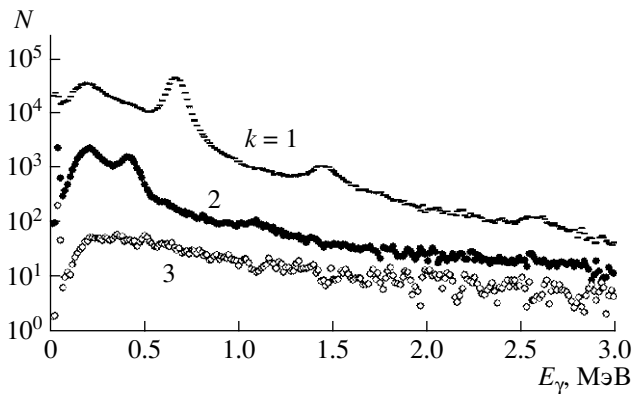


Рис. 4. Спектры образца с  $^{137}\text{Cs}$  (203.4 Бк) в различных режимах совпадений  $k$  ( $t = 2000$  с).

исключить влияние загрязненности радионуклидом  $^{137}\text{Cs}$ , который является однокаскадным  $\gamma$ -излучателем (662 кэВ) и не дает существенного вклада в спектры совпадений в интересующей области. Как показали проведенные измерения, линия 662 кэВ, которая практически не дает вклада в спектры двукратных совпадений, плохо разрешима с линией 583 кэВ в спектрах  $k = 1$  (рис. 4).

Преимущество измерения активности  $^{232}\text{Th}$  и его дочерних продуктов распада на шестикристалльных 4л-спектрометрах  $\gamma$ -совпадений

ПРИПЯТЬ в первую очередь связано с высокой чувствительностью метода двойных совпадений, а также с возможностью измерения образцов любой формы, в том числе крупнообъемных (до 5 л), без дополнительных временных и физических затрат на подготовку проб и калибровочные измерения для различных геометрий образцов.

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. ENSDF Web Search. Isotope Explorer. Version 3.0 (<http://ie.lbl.gov/ensdf/>).
2. *Andjelic T., Vukotic P., Zizic R. et al.* // Proc. of the XXIII symposium of Yugoslav society of radiation protection. Donji Milanovac, Serbia, 2005. P. 317.
3. *Адамович А.А., Корнеев С.В., Марцынкевич Б.А. и др.* // Весці НАН Беларусі. Сер. физ.-техн. наук. 2004. № 3. С. 110.
4. *Cooper J.A., Perkins R.W.* // Nucl. Instrum. and Methods. 1972. V. 99. P. 125.
5. *Берестов А.В., Гутько В.И., Хильманович А.М.* // ПТЭ. 1990. № 2. С. 67.
6. *Андрухович С.К., Антонович Н.М., Берестов А.В. и др.* // ПТЭ. 1999. № 1. С. 123.
7. *Берестов А.В., Зязюля Ф.Е.* // ПТЭ. 1990. № 2. С. 67.
8. GammaVision-32. Gamma-Ray HPGe Spectral Analysis. A66-B32. 2003. ORTEC.