

ФИЗИКО-МАТЕМАТИЧЕСКИЕ АСПЕКТЫ ЛИКВИДАЦИИ ПОСЛЕДСТВИЙ ЧРЕЗВЫЧАЙНЫХ СИТУАЦИЙ

ОБОСНОВАНИЕ МЕТОДА ИДЕНТИФИКАЦИИ РАДИОНУКЛИДОВ ПРИ ПРОВЕДЕНИИ РАДИАЦИОННЫХ ИССЛЕДОВАНИЙ НА РАДИАЦИОННО-ЗАГРЯЗНЕННОЙ МЕСТНОСТИ

Е.Е. Куницына;

Р.А. Возгрин, кандидат технических наук.

**Научно-исследовательский центр безопасности технических систем
12 центрального научно-исследовательского института Министерства
обороны Российской Федерации.**

С.Ю. Николашин, кандидат технических наук.

Санкт-Петербургский университет ГПС МЧС России

Представлен метод идентификации радионуклидов с использованием жидкосцинтилляционных счетчиков. Выполнена оценка программных методов идентификации радионуклидов при расшифровке сложных аппаратурных спектров.

Ключевые слова: радионуклид, аппаратурные спектры, уровень активности, методы идентификации

JUSTIFICATION OF THE METHOD OF IDENTIFICATION OF RADIONUCLIDES IN CONDUCTING OPERATIONAL RESEARCH ON RADIATION-CONTAMINATED AREAS

E.E. Kunitsyna; R.A. Vozgrin. Research centre of security of technical systems 12 Central research institute of the Ministry of defence of the Russian Federation.

S.Yu. Nikolashin. Saint-Petersburg university of State fire service of EMERCOM of Russia

This paper presents a method of identifying radionuclides using a liquid scintillator counter. Evaluated software methods for the identification of radionuclides at deciphering complex measured spectra.

Keywords: radionuclide, instrumental spectra, levels of activity, methods of identification

Современные жидкосцинтилляционные счетчики (ЖСС), комплектуемые стандартным программным обеспечением, позволяют количественно определять, как правило, один известный радионуклид, выделенный из смеси радиохимическими методами или изначально используемый в качестве радиоактивной метки. Кроме того, эффект тушения, вызванный влиянием состава счетного образца на сцинтиллятор, вызывает деформацию спектра. Из-за этого разбиение на энергетические интервалы для проб

с различным тушением становится некорректным и требуется новая калибровка. Таким образом, сложные аппаратные спектры, полученные на ЖСС счетчиках, с помощью традиционных подходов разрешить не удастся.

Специалисты Московского научно-производственного объединения «Радон» разработали новый подход к расшифровке сложных спектров, позволяющий в большинстве случаев намного ускорить и удешевить процесс получения оперативной информации при проведении радиационного мониторинга и контроля.

Разработанный подход был тестирован практически на всех моделях доступных ЖСС («TRI-CARB» (США), «Quantulus», «Guardian», «Triathler» (Финляндия), «СКС-07П» (Россия) и др. и выявил уникальную способность одновременного определения большого числа радионуклидов в сложных смесях с различными соотношениями активностей без радиохимического выделения индивидуальных компонентов, включая случаи, когда активности высокоэнергетических компонентов превышают активности низкоэнергетических [1, 2].

Для того чтобы ЖСС счетчик работал в режиме спектрометра, а именно имел возможность одновременного определения в анализируемом образце большого количества радионуклидов с различными уровнями активности, необходимо создание программного обеспечения по расшифровке непрерывных спектров, базирующееся на соответствующей аналитической базе и позволяющее моделировать форму аппаратного спектра спектрами отдельных радионуклидов. Для достижения поставленной цели решались следующие задачи:

– формирование библиотеки образцовых спектров наиболее распространенных α -, β - излучающих радионуклидов путем проведения серий измерений стандартных аттестованных растворов изотопов при различных параметрах тушения;

– разработка программных средств расшифровки непрерывных аппаратных спектров смесей радионуклидов и апробация на модельных системах с различным соотношением радионуклидных компонентов.

Формирование библиотеки радионуклидов [3]

Для каждого из анализируемых радионуклидов из образцовых растворов готовят серии из 10–12 измерительных флаконов с одинаковым количеством радиоактивной метки (50–1500 Бк/пробу). В каждый из флаконов, начиная со второго, вносят возрастающее количество (от 5 до 180 мкл) химического тушителя четыреххлористого углерода (CCl_4), после чего измеряют всю серию на ЖСС «TRI-CARB 2750 TR/LL» в нормальном режиме измерения (в зависимости от активности радионуклида) с записью всех спектров в радионуклидную библиотеку. При этом каждому значению параметра тушения ($tSIE$) соответствует определенная эффективность регистрации радионуклида (кривая тушения). В созданной библиотеке все спектры нормированы к единичной активности и свернуты в группы по запатентованному алгоритму.

Алгоритм сворачивания аппаратных спектров в группы – квазиарифметическая прогрессия с граничными значениями N_k :

$$N_{k+1} = N_k + [(k+1)/2], \quad k=1, \dots, K,$$

где k – номер группы; K – число групп.

Формула сворачивания выглядит при этом следующим образом:

$$G_k = \frac{1+k}{[(1+k)]/2} \sum_{i=N_k}^{N_{k+1}-1} P_i, \quad k=1, 2, \dots,$$

где G_k – групповой спектр; P_i – аппаратный.

Разработка программного обеспечения расшифровки непрерывных спектров для ЖСС «TRI-CARB 2750 TR/LL» [4]

В программе расшифровки используют процесс моделирования аппаратного спектра пробы спектрами отдельных радионуклидов из созданной библиотеки при заданном значении параметра тушения, то есть создается некоторый модельный спектр, представляющий собой сумму элементарных спектров отдельных изотопов (M_{ij} , $j=1,2,\dots,J$) с весовым коэффициентом c_j , который максимально приближен к аппаратному спектру пробы (P_i , $i=1,\dots,N$). Для определения малой активности альфа-излучающих нуклидов в пробах на фоне радионуклидов с большой активностью применяют следующий алгоритм минимизации модельного спектра от спектра пробы:

$$\sum_{i=1}^N \left(\frac{P_i - \sum_{j=1}^J c_j M_{ij}}{\min\left(P_i, \sum_{j=1}^J c_j M_{ij}\right) + \delta} \right)^2 + f_{pen}(c_1, c_2, \dots, c_J) = \min,$$

где i – номер канала многоканального анализатора ЖС-спектрометра; N – число каналов; j – индекс радионуклида; J – количество используемых радионуклидов; δ – коэффициент устойчивости процесса минимизации; $f_{pen}(c_1, c_2, \dots, c_J)$ – штрафная функция; $\sum_{j=1}^N M_{ij} = 1$,

$$\sum_{j=1}^N P_j = 1.$$

Выбор коэффициента одновременно влияет как на устойчивость решения (чем больше δ , тем лучше устойчивость), так и на чувствительность метода определения низких активностей на фоне общей активности (чем больше δ , тем хуже эта чувствительность). При расчете сначала выбирается большая величина коэффициента δ , находится минимум. Далее δ уменьшается и процесс минимизации повторяется. При этом исходными значениями вкладов c_j для каждого следующего шага являются результаты предыдущего шага. Расчет останавливается, когда процесс минимизации становится неустойчивым. На первом шаге определяются нуклиды с самой высокой активностью, а на каждом последующем шаге увеличивается вес низлежащих областей спектра при сохранении результатов предыдущего шага. Такой алгоритм позволяет свести к минимуму основную проблему задачи минимизации – неоднозначность решения, возможность нахождения недействительного минимума. Программа расшифровки обеспечивает:

- возможность разделения α -, β - излучающих радионуклидов;
- разделение программными средствами пар радионуклидов с близкими граничными (средними) энергиями излучения в спектре при их соотношении по активности до одного порядка, разделение смесей радионуклидов с различными энергиями при градиенте активностей до двух порядков;
- автоматизированный расчет активностей компонентов спектра с учетом показателя тушения счетного образца;
- отображение результатов измерений и обработка в режиме реального времени;
- представление спектров в графическом виде всех спектров (аппаратного, модельного и всех его составляющих);
- представление отчета о результатах обработки в табличном и графическом виде.

Пример представления результатов показан на рис. 1, 2.

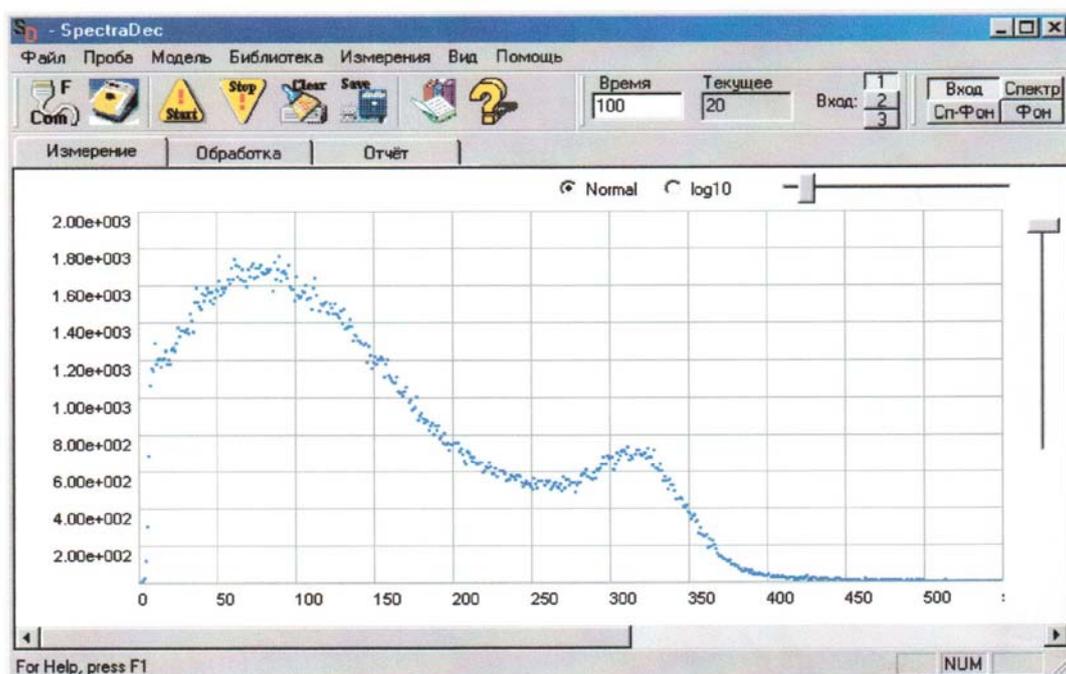


Рис. 1. Аппаратный спектр измерения активности

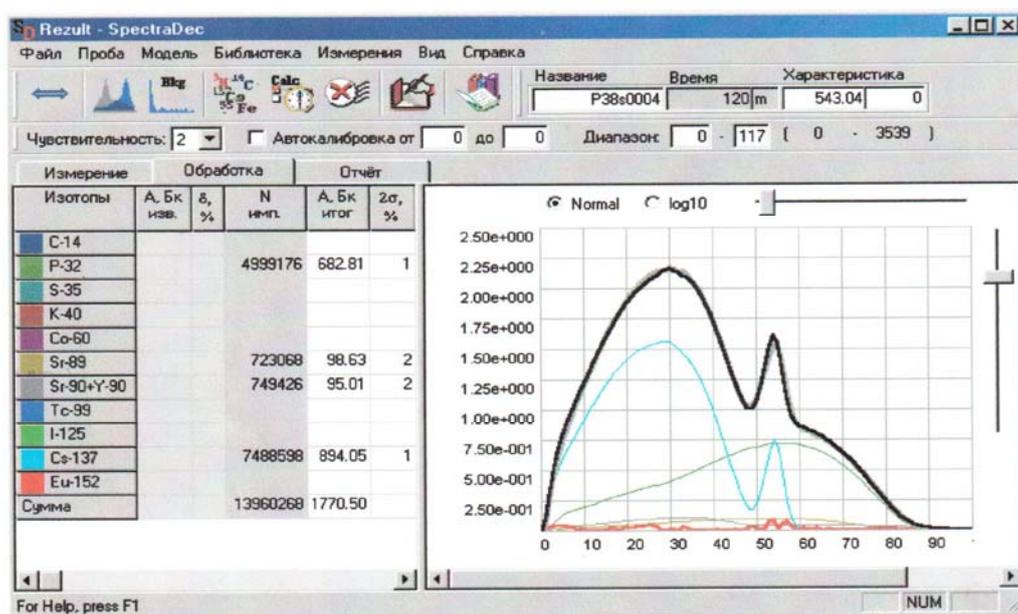


Рис. 2. Графическое представление расшифровки спектра и расчет активности отдельных радионуклидов

Применение программных методов идентификации радионуклидов на базе Лаборатории радиационного контроля

Для нужд Лаборатории радиационного контроля (ЛРК) разработано программное обеспечение, позволяющее идентифицировать в пробах следующие радионуклиды:



Данный метод успешно применяется при исследовании элементного состава радиоактивных загрязнений местности в соответствии с требованиями [5]. Ранее исследование элементного состава загрязнений проводилось на основании классических методов радиохимического выделения отдельных радионуклидов из смеси в соответствии с требованиями соответствующих методик [6–8].

В качестве примера сравнительного анализа различных методов радионуклидного анализа приведены результаты исследования пробы грунта со сложным радионуклидным составом:

1. Определение активности альфа-, бета- излучающих радионуклидов на радиометре TRI-CARB 2750 TR/LL с помощью программного обеспечения Spectra Dec.

На рис. 3 приведен результат расшифровки непрерывного спектра альфа-, бета- излучения, полученного при измерении.

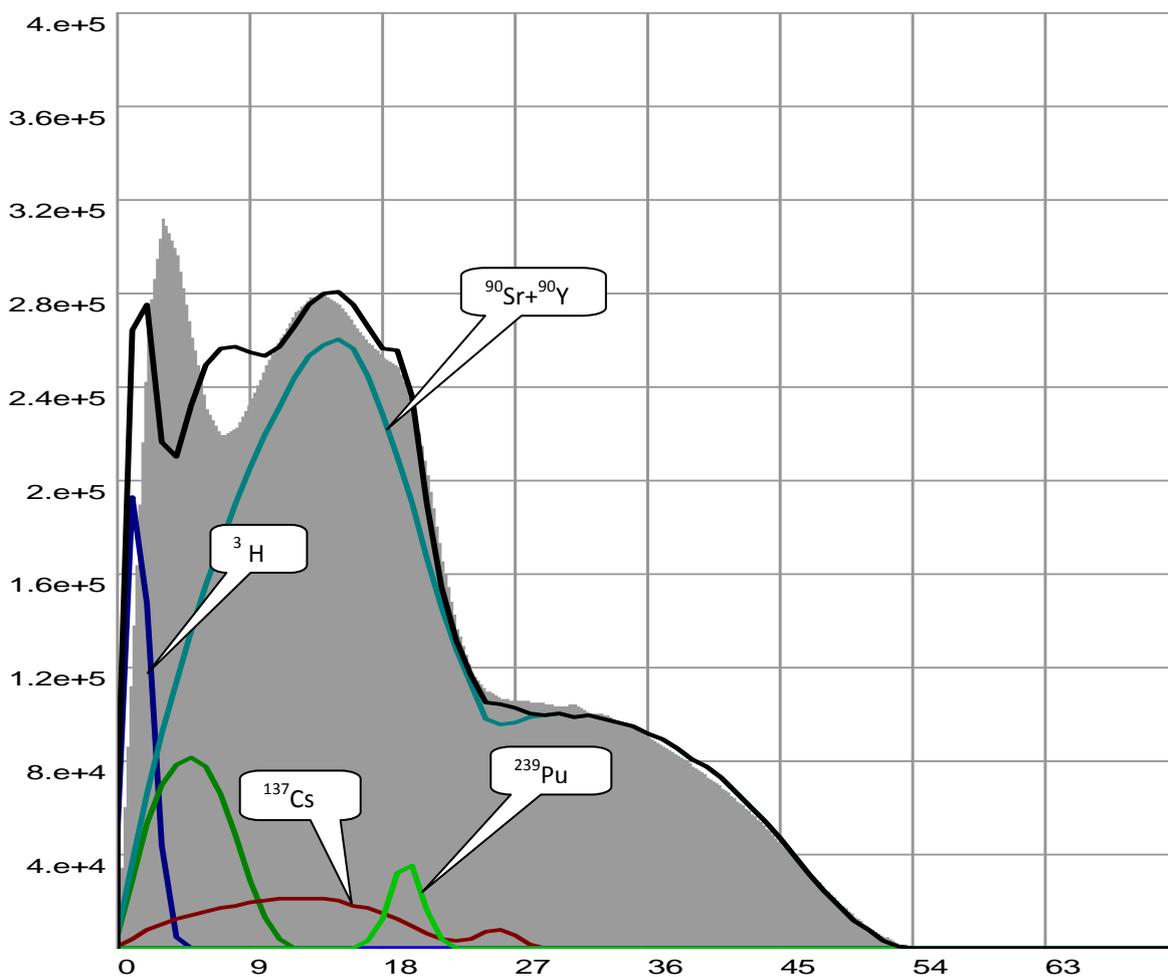


Рис. 3. Спектр альфа-, бета- излучения счетного образца пробы

В табл. 1 – количественная оценка удельной активности обнаруженных радионуклидов расчет получен в соответствии с требованиями методики выполнения измерений (МВИ) [5].

Таблица 1. Результаты определения активности альфа-, бета- излучающих радионуклидов

| | | | | |
|--------------------|------------------|----------------|-----------------------|----------------|
| Проба | (грунт) | – | – | (Spectra Dec) |
| Шифр пробы: | P11S0004.201.1 | – | – | – |
| Время измерения, с | 10 800 | – | – | – |
| Масса (объем) | 2,5 г (мл) | – | – | – |
| tSIE | 148 | – | – | – |
| Изотопы | Кол-во импульсов | Активность, Бк | Активность, Бк/кг (л) | Погрешность, % |
| H-3 | 440 385 | 306 | 1,53e+5 | 1,8 |
| C-14 | 560 880 | 64,2 | 3,21e+4 | 1,4 |
| Sr-90+Y-90 | 6 285 621 | 596 | 1,98e+5 | 0,13 |
| Cs-137 | 367 299 | 30,5 | 4,52e+4 | – |
| U-234 | – | – | 7,3e+2 | – |
| U-235+Th-2 | – | – | 8,9e+2 | – |
| U-238 | – | – | 2,5e+2 | – |
| Pu-239 | 108 465 | 9,75 | 4,88e+3 | 7 |
| Сумма | 7 762 651 | 1,01e+3 | 5,03e+5 | – |

2. Определение активности радионуклидов Sr-90+Y-90 после радиохимического выделения с последующим измерением на радиометре TRI-CARB 2750 TR/LL.

Предварительное радиохимическое выделение радионуклидов Sr-90+Y-90 проведено методом экстракционной хроматографии. На рис. 4 приведен результат расшифровки непрерывного спектра, полученного при измерении. В табл. 2 – количественная оценка удельной активности выделенных радионуклидов Sr-90+Y-90 в соответствии с требованиями МВИ [2].

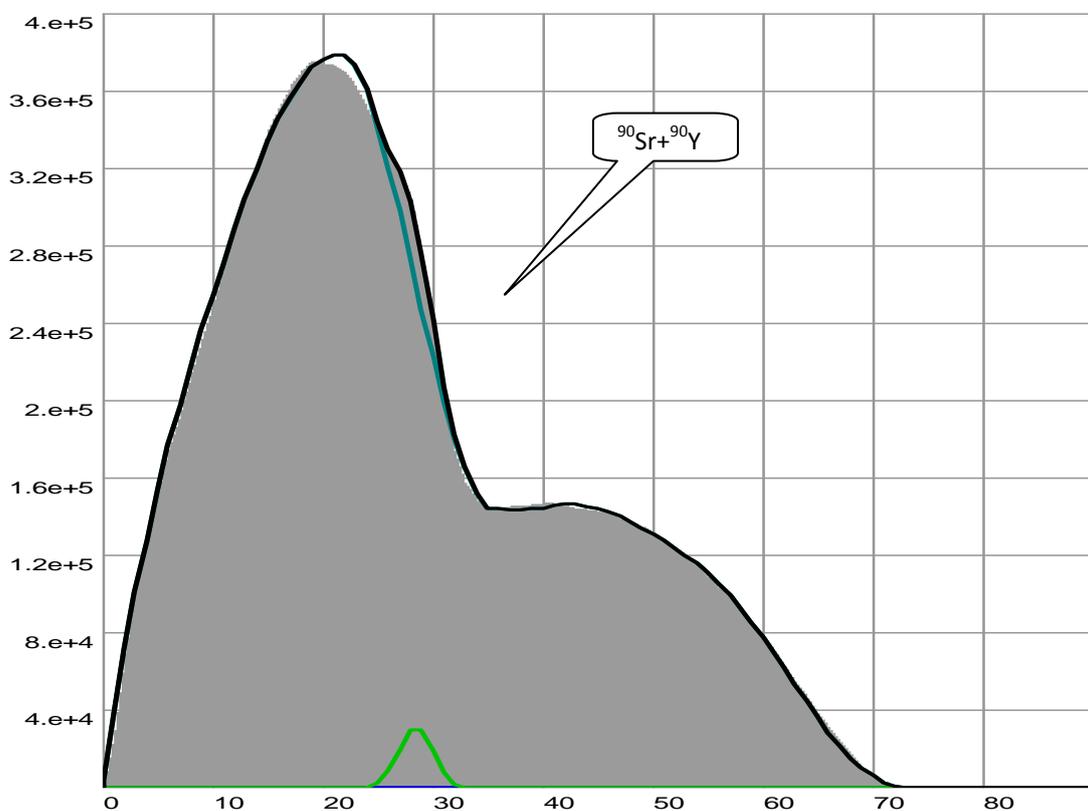


Рис. 4. Спектр бета-излучения счетного образца пробы

Таблица 2. Результаты определения активности бета-излучающих радионуклидов Sr-90+Y-90

| | | | | |
|--------------------|------------------|----------------|-----------------------|----------------|
| Проба | (грунт) | – | – | – |
| Шифр пробы: | P11S0004.204.2 | – | – | – |
| Время измерения, с | 10 800 | – | – | – |
| Масса (объем) | 2,5 г (мл) | – | – | – |
| tSIE | 226 | – | – | – |
| Изотопы | Кол-во импульсов | Активность, Бк | Активность, Бк/кг (л) | Погрешность, % |
| H-3 | – | – | < 1.e+3 | – |
| C-14 | – | – | < 3.e+2 | – |
| Sr-90+Y-90 | 12 523 102 | 1,17e+3 | 1,69e+5 | 8e-00 |
| Cs-137 | 367 299 | – | < 2,4e+2 | – |
| U-234 | – | – | < 2,7e+2 | – |
| U-235+Th-2 | – | – | < 3,2e+2 | – |
| U-238 | – | – | < 90 | – |
| Pu-239 | 125 373 | 11,3 | 1,63e+3 | 8 |
| Сумма | 12 648 476 | 1,18e+3 | 1,71e+5 | – |

3. Определение активности гамма-излучающих радионуклидов на полупроводниковом гамма-спектрометре.

На рис. 5 приведен результат расшифровки дискретного спектра гамма-излучения, полученного при измерении. В табл. 3 – количественная оценка удельной активности обнаруженных радионуклидов в соответствии с требованиями МВИ [3].

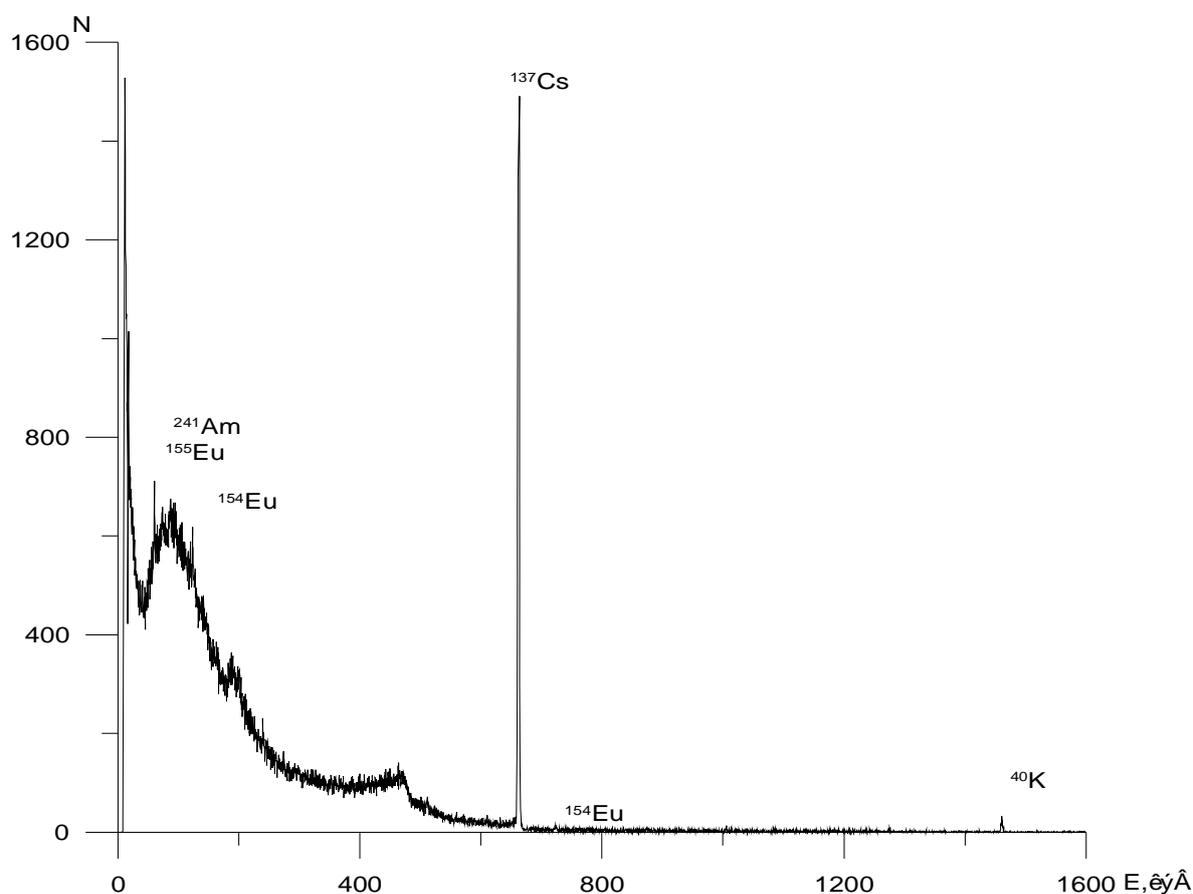


Рис. 5. Спектр гамма-излучения счетного образца пробы

Таблица 3. Результаты измерения активности гамма-излучающих радионуклидов

| Радионуклид | Период полураспада, лет | Активность в пробе, Бк | Масса пробы, г | Удельная активность, Бк/кг |
|-------------------|-------------------------|------------------------|----------------|----------------------------|
| ^{137}Cs | 30,17 | 1100 ± 50 | 160,2 | 6860 ± 340 |
| ^{241}Am | 432,20 | $42,6 \pm 5,0$ | – | 266 ± 30 |
| ^{154}Eu | 8,59 | $12,9 \pm 4,0$ | – | 82 ± 24 |
| ^{155}Eu | 4,73 | $12,0 \pm 4,0$ | – | 80 ± 24 |

4. Определение активности радионуклидов плутония-239 после радиохимического выделения с последующим измерением на радиометре TRI-CARB 2750 TR/LL.

Предварительное радиохимическое выделение радионуклидов плутония-239 проведено методом ионообменной хроматографии. На рис. 6 приведен результат расшифровки дискретного спектра, полученного при измерении. В табл. 4 – количественная оценка удельной активности выделенных радионуклидов плутония-239 в соответствии с требованиями МВИ [4].

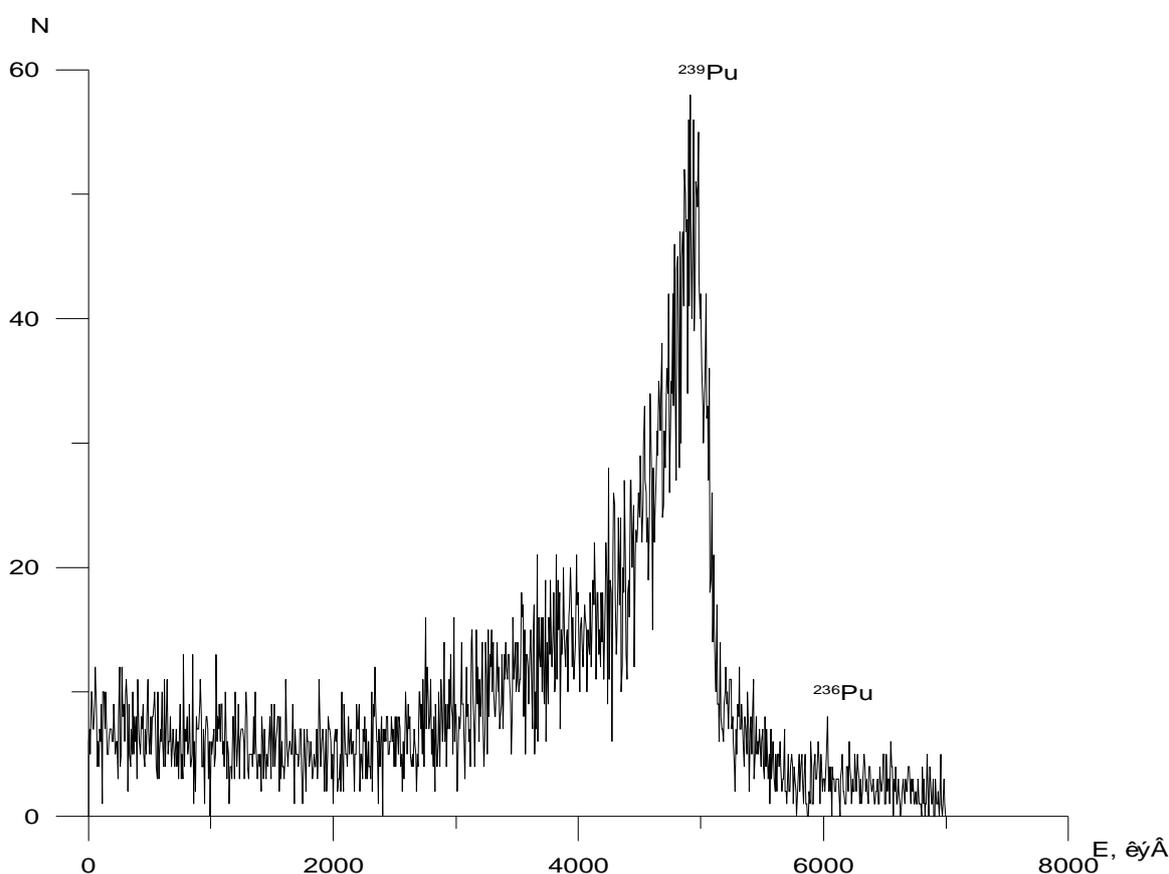


Рис. 6. Спектр альфа-излучения счетного образца пробы

Таблица 4. Результаты измерения активности альфа-излучающих радионуклидов плутония-239

| Радионуклид | Период полураспада, лет | Активность в пробе, Бк | Масса пробы, г | Удельная активность, Бк/кг |
|-------------------|-------------------------|------------------------|----------------|----------------------------|
| ^{239}Pu | $2,411 \cdot 10^4$ | $4,5 \pm 1,5$ | 1,0 | $4,5 \cdot 10^3$ |

Анализируя количественные оценки содержания радионуклидов техногенного происхождения ($^{90}\text{Sr}+^{90}\text{Y}$, ^{137}Cs , ^{239}Pu) в пробе, следует отметить достаточно удовлетворительную сходимость результатов в рамках методической погрешности, заявленной в методиках выполнения измерений, некоторое расхождение результатов связано с ограничениями, указанными разработчиками программного обеспечения Spectra Dec выше (табл. 5).

Таблица 5. Сравнительные данные программного и радиохимического методов исследования

| Методы исследования | Содержание радионуклидов в пробе, Бк/кг | | |
|---------------------|---|--------------------------------|-------------------|
| | ^{137}Cs | $^{90}\text{Sr}+^{90}\text{Y}$ | ^{239}Pu |
| программный | $4,52 \cdot 10^4$ | $1,98 \cdot 10^5$ | $4,88 \cdot 10^3$ |
| радиохимический | $6,8 \cdot 10^4$ | $1,69 \cdot 10^5$ | $4,5 \cdot 10^3$ |

Применение программных методов для первичной оценки содержания радионуклидов в различных пробах представляется весьма эффективным, учитывая следующие особенности радиохимических методов:

- высокие трудозатраты;
- длительность радиохимической пробоподготовки перед измерением;
- использование дорогостоящих химических реактивов;
- требование высокой квалификации специалистов в области радиохимии, радиометрии и спектрометрии;
- наличие в лаборатории аппаратуры, регистрирующей отдельные виды излучения (гамма-спектрометр, бета-радиометр, ионизационная альфа-камера). Однако наиболее точным является радиохимический метод.

Выводы

Комплексное использование двух методов радионуклидного исследования в пробах является наиболее эффективным, так как позволяет решить следующие задачи:

- при применении программного метода исследования дает возможность проведения экспресс-анализа в сжатые сроки, исключая радиохимическое выделение отдельных радионуклидов, что сокращает время исследования и позволяет увеличить число анализируемых проб;
- возможности базовой программы позволили расширить круг исследуемых α -, β -, γ - излучающих радионуклидов, обнаружить в пробе большое содержание ^3H , ^{14}C , а также природные радионуклиды;
- базовая программа позволяет «подгружать» другие радионуклиды в состав библиотеки радионуклидов (в зависимости от задачи исследования);
- уточнение результатов гамма-спектрометрического анализа для радионуклидов, имеющих α -, β - излучение (в частности ^{137}Cs);
- радиохимическое выделение выявленных при идентификации радионуклидов, очистка и более точное определение их активности (при необходимости);
- сопоставимость результатов определения активности α -, β -, γ - излучающих радионуклидов, полученных двумя независимыми методами, подтверждает достоверность полученных результатов.

Литература

1. Способ идентификации радионуклидов в пробах с использованием жидкостного сцинтилляционного счетчика: пат. 2132074 Рос. Федерация; заявитель и патентообладатель МосНПО «Радон»; заявл. 03.04.98; опубл. 20.06.99. FREEPATENT. URL: www.freepatent.ru (дата обращения: 12.11.15).
2. Способ идентификации радионуклидов в пробах с использованием жидкостного сцинтилляционного счетчика: пат. 2120646 Рос. Федерация; заявитель и патентообладатель МосНПО «Радон»; заявл. 08.12.97; опубл. 20.10.98. FREEPATENT. URL: www.freepatent.ru (дата обращения: 12.11.15).
3. Формирование библиотеки радионуклидов для ЖСС «TRI-CARB 2750 TR/LL: отчет. М.: ГУП Мос НПО «Радон», 2008. 10 с.
4. Разработка программного обеспечения для обработки спектров жидко-сцинтилляционного спектрометра модели «TRI-CARB 2750 TR/LL: отчет. М.: ГУП Мос НПО «Радон», 2008. 10 с.
5. Методика выполнения измерений удельной активности альфа-, бета-излучающих нуклидов в пробах объектов окружающей среды на основе программного обеспечения Spectra Dec Мос НПО «Радон». СПб.: НИЦ БТС 12 ЦНИИ Минобороны России, 2015. 27 с.
6. Методика выполнения измерений удельной активности радионуклидов стронция-89, 90 в пробах окружающей среды и специальных сорбентах. СПб.: НИЦ БТС 12 ЦНИИ Минобороны России, 2008. 24 с.
7. Методика выполнения измерений активности и определения состава гамма-излучающих нуклидов в пробах почв и сыпучих материалов окружающей среды. СПб.: НИЦ БТС 12 ЦНИИ Минобороны России, 2008. 68 с.
8. Методика выполнения измерений удельной активности 238, 239+240Pu в пробах окружающей среды и специальных сорбентах с использованием ионообменной хроматографии. СПб.: НИЦ БТС 12 ЦНИИ Минобороны России, 2009. 35 с.
9. Результаты проведения специального комплексного учения с использованием ЕАСИ: НТО. СПб.: НИЦ БТС 12 ЦНИИ Минобороны России, 2013. 135 с.