

ФИЗИЧЕСКИЕ ПРИБОРЫ ДЛЯ ЭКОЛОГИИ,  
МЕДИЦИНЫ, БИОЛОГИИ

УДК 539.1.074

АВТОМАТИЗИРОВАННАЯ МЕТОДИКА ИДЕНТИФИКАЦИИ  
И ИЗМЕРЕНИЯ АКТИВНОСТЕЙ КОРОТКОЖИВУЩИХ  
РАДИОНУКЛИДОВ

© 2013 г. С. В. Артемов, О. Ш. Жураев, А. А. Караходжаев, М. А. Каюмов,

**В. П. Якушев, О. Р. Тожибоев**

*Институт ядерной физики АН РУз  
Узбекистан, 100214, Ташкент, пос. Улугбек  
E-mail: juraev@inp.uz*

Поступила в редакцию 18.05.2012 г.

Представлена автоматизированная измерительная система, позволяющая определять постоянные распада и активности радионуклидов в образце. Используемая методика ориентирована на идентификацию радионуклидов, образующихся при облучении материалов быстрыми нейтронами. Достоинством методики является процедура измерения временной зависимости спада активности после завершения облучения, позволяющая набирать максимальную статистику при конкретной эффективности регистрации за счет минимизации пауз между отдельными измерениями. Созданная методика была апробирована при калибровке монитора потока нейтронов от генератора НГ-150. В качестве образца (активационного детектора) была использована медная фольга высокой химической чистоты с естественным изотопным составом.

DOI: 10.7868/S0032816213020018

## ВВЕДЕНИЕ

В ядерной физике и в прикладных ядерно-физических задачах (например, активационный анализ проб, измерение потока нейтронов, измерение сечений и выходов реакций методом активации) необходимы идентификация радионуклидов по их периоду полураспада и измерение их активности.

Нейтронно-активационный анализ на быстрых нейтронах с применением пороговых реакций ( $n, p$ ), ( $n, d$ ) и ( $n, 2n$ ) широко используется для определения содержания легких элементов [1]. Обычно при активации легких элементов быстрыми нейтронами образуются  $\beta^+$ -активные изотопы — источники аннигиляционных  $\gamma$ -квантов. При активации элементов в области масс от углерода до неона образующиеся радионуклиды излучают только позитроны (и соответственно только аннигиляционные кванты), а в области от натрия до меди интенсивность аннигиляционного излучения на 2 порядка и более превышает интенсивности других излучаемых  $\gamma$ -линий.

В данной работе описана автоматизированная измерительная система, позволяющая определять постоянные распада и активности радионуклидов в образце.

## ОПИСАНИЕ МЕТОДИКИ

Процедура анализа состоит из трех этапов.

1. Активация исследуемого образца (например, быстрыми нейтронами нейтронного генератора).

При этом, как правило, необходимо фиксировать время начала и окончания облучения и иметь постоянный в течение этого времени поток активирующего излучения (либо вести непрерывное измерение интенсивности потока во времени).

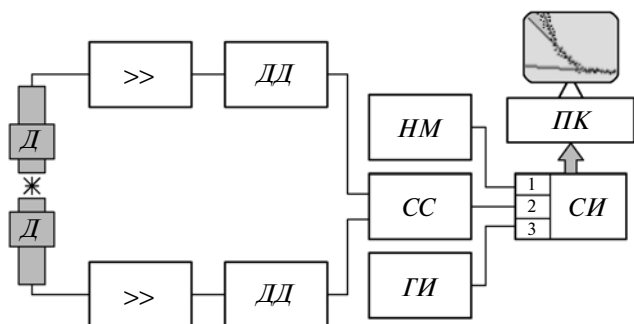
2. Набор информации. При этом накапливаются значения интенсивности каких-либо продуктов распада радионуклидов в пробе (например, выделенной  $\gamma$ -линии) как функции времени. Спектрометрическая информация не накапливается.

3. Анализ набранной информации. Предусмотрены 2 варианта обработки данных — аналитический и графический.

В созданной методике эти этапы реализуются с использованием нейтронного потока генератора нейтронов НГ-150 ИЯФ АН РУз, сцинтилляционного спектрометра  $\gamma\gamma$ -совпадений, сопряженного с программно управляемыми счетчиками импульсов СИ собственной разработки [2] (см. блок-схему электроники на рис. 1) и специализированного программного обеспечения.

## ПРОЦЕДУРА АКТИВАЦИИ

Исследуемые образцы активируются на нейтронном генераторе НГ-150 быстрыми нейтронами с энергией  $\sim 14$  МэВ, генерируемыми в реакции  $D + T \rightarrow n + \alpha$  с максимальным потоком  $\sim 10^{10}$  нейтронов/с в угол  $4\pi$ . Поток нейтронов мониторируется по интенсивности сигналов от  $^3\text{He}$ -содержа-



**Рис. 1.** Блок-схема электроники автоматизированной системы измерения активностей и периодов полураспада. ДД – дифференциальный дискриминатор; ГИ – генератор импульсов; СС – схема совпадений; СИ – счетчик импульсов; НМ – нейтронный монитор; Д – детектор; ПК – персональный компьютер.

щего счетчика Гейгера, установленного вблизи триетивой мишени нейтронного генератора.

С началом облучения запускается счетчик импульсов монитора потока нейтронов СИ<sub>1</sub> и генератор импульсов ГИ с фиксированной частотой следования импульсов, подаваемых на вход СИ<sub>3</sub> – таймера-счетчика текущего времени  $t_{Mi}$ , соответствующего интервалу времени от начала облучения до начала очередного отсчета монитора. Для протоколирования временной зависимости нейтронного потока показания  $M_i$  счетчика СИ<sub>1</sub> считываются управляющей программой через программно задаваемые интервалы времени  $\Delta t_{Mj}$ .

Поток  $\Phi$  быстрых нейтронов в угол  $4\pi$  связан со скоростью счета  $n_M$  как  $\Phi = kn_M$ , где  $k$ , нейтрон/импульс – константа монитора;  $n_M = M/\Delta t_M$ . Интенсивность потока нейтронов регулируется либо выходом нейтронов, либо расстоянием от облучаемых образцов до нейтронной мишени. Отметим, что использование генератора текущего времени позволяет учесть мертвое время, затрачиваемое на считывание и перезапуск счетчика СИ<sub>1</sub>.

При облучении фиксируется полное время облучения  $t_{irr}$ , соответствующее показанию счетчика СИ<sub>1</sub> в момент прекращения облучения, и осуществляется накопление следующих массивов данных:  $\{M_j\}$  – отсчетов монитора нейтронного потока,  $\{t_{Mi}\}$  – значений астрономического времени начала каждого  $i$ -го отсчета и  $\{\Delta t_{Mj}\}$  – длительностей накопления каждого отсчета. По этим данным при необходимости можно учесть вариации потока нейтронов в процессе облучения.

### ПРОЦЕДУРА ИЗМЕРЕНИЯ

В момент прекращения облучения по сигналу с пульта оператора НГ-150 программа управления прекращает чтение информации от счетчика монитора СИ<sub>1</sub>, считывает показания счетчиков и пе-

резапускает счетчик текущего времени СИ<sub>3</sub>, который измеряет время от завершения облучения до начала измерения (время охлаждения  $t_c$ ).

После установки облученного образца в позицию измерения (с помощью пневмопочты или вручную) производится считывание содержимого и перезапуск счетчика СИ<sub>3</sub>. Затем запускается счетчик СИ<sub>2</sub>, регистрирующий импульсы либо от дифференциального дискриминатора ДД, окно которого настроено на фотопик выбранной  $\gamma$ -линии распада определяемого радионуклида, либо от схемы совпадений СС (см. рис. 1), сигналы которой соответствуют регистрации двух совпадающих аннигиляционных  $\gamma$ -квантов при  $\beta^+$ -распаде интересующего радионуклида.

В случае, когда  $\beta^+$ -распад происходит в основное состояние стабильного ядра, окна дифференциальных дискриминаторов могут пропускать весь спектр амплитуд – от нижнего порога, дискриминирующего шум, до фотопика аннигиляционных  $\gamma$ -квантов, что повышает эффективность регистрации и, следовательно, экспрессность анализа.

В процессе измерения автоматически осуществляется запись числа импульсов от ДД (или СС) и ГИ с задаваемым оператором периодом  $\Delta t$  набора импульсов совпадений (10, 60 или 600 с в зависимости от периода полураспада наиболее короткоживущего радионуклида в пробе). Период набора можно программно изменять в процессе измерения.

Процесс измерения по длительности в принципе не ограничен и может быть автоматически прекращен, когда интенсивность регистрируемых событий становится близкой к фоновой. При измерениях анализируемой пробы осуществляется накопление следующих массивов данных:  $\{N_j\}$  – отсчетов зарегистрированных пар аннигиляционных  $\gamma$ -квантов от пробы ( $j = 1, \dots, j_{\max}$ );  $\{\tau_j\}$  – значений времен начала счета каждого  $j$ -го отсчета;  $\{\Delta t_j\}$  – длительностей накопления каждого отсчета.

### ПРОЦЕДУРА АНАЛИЗА

Пусть анализируется информация, набранная через время  $t_c$  после окончания облучения при регистрации двумя детекторами числа совпадений  $\gamma$ -квантов с энергией 511 кэВ. Эффективность  $\epsilon$  регистрации числа совпадений спектрометром (см. рис. 1) определяется с помощью образцового спектрометрического  $\gamma$ -источника аннигиляционного излучения (например, Na<sup>22</sup>).

Предусмотрены 2 варианта обработки данных. Первый вариант используется при наличии априорных сведений о том, какие могут образоваться в пробе радионуклиды, второй вариант – при отсутствии таких сведений.

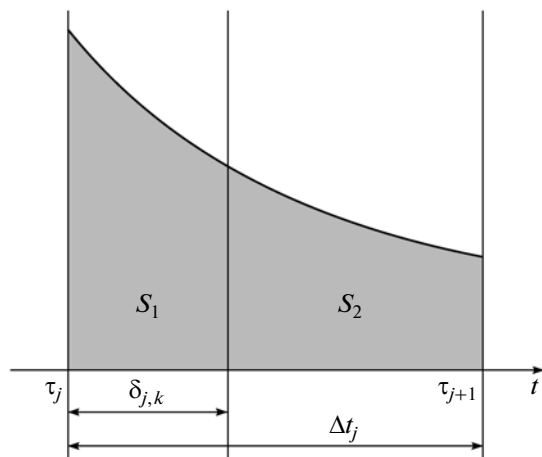


Рис. 2. Поправки к временным интервалам (см. текст).

**Первый вариант.** Пусть для определенности проба содержит  $k_{\max}$  радионуклидов с постоянными распада  $\lambda_k$  и выходами позитронов  $Y_k$ . Рассчитывается массив значений интенсивностей  $n_j = N_j/\Delta t_j - n_f$ , где  $n_f$  — интенсивность фонового счета совпадений, через набранные массивы отсчетов и массив значений астрономического времени  $t_{j,k}$ , соответствующего “центру тяжести” интервала измерения в каждом отсчете:

$$t_{j,k} = t_c + \tau_j + \delta_{j,k}. \tag{1}$$

В выражении (1)  $\delta_{j,k}$  — коррекция, учитывающая экспоненциальную неравномерность “мгновенной” интенсивности излучения от  $k$ -го радионуклида по интервалу времени измерения  $\Delta t_j$ . Коррекция  $\delta_{j,k}$  находится из условия равенства числа распадов  $S_1$  и  $S_2$  во временных интервалах  $\delta_{j,k}$  и  $\Delta t - \delta_{j,k}$  (рис. 2).

Сдвиг  $\delta_{j,k}$  легко находится из условия:

$$\int_{t_j}^{t_j+\delta} e^{-\lambda\tau} d\tau = \int_{t_j+\delta}^{t_j+\Delta} e^{-\lambda\tau} d\tau \Rightarrow \delta = \frac{1}{\lambda} [\ln 2 - \ln(1 + e^{-\lambda\Delta})], \tag{2}$$

т.е. время от момента прекращения облучения до момента, приписываемого  $j$ -му отсчету интенсивности, различно для радионуклидов с различными периодами полураспада (в пределах интервала измерения этой интенсивности). Отметим, что эта коррекция становится пренебрежимо малой, если время измерения  $\Delta t_j$  много меньше периода полураспада наиболее короткоживущего радионуклида.

Значения начальной активности  $A_k$  каждого радионуклида ( $k = 1, \dots, k_{\max}$ ) отыскиваются методом наименьших квадратов. Соответствующий функционал  $\chi^2$  имеет следующий вид ( $j_{\max} > k_{\max}$ ):

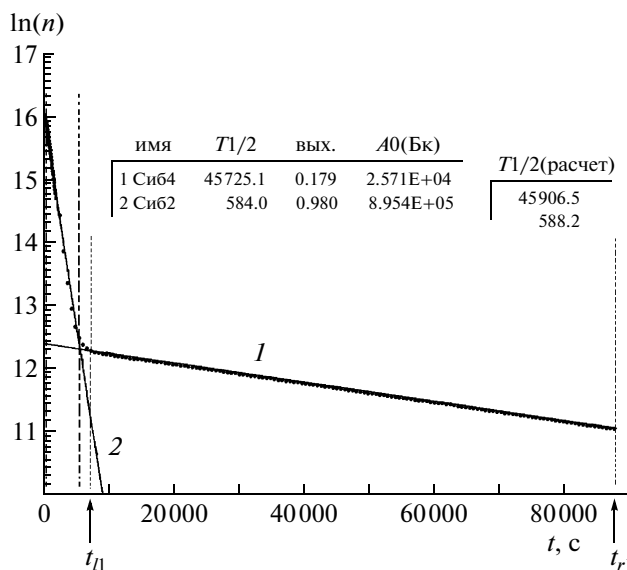


Рис. 3. Вид набранной информации и результатов анализа, выводимых на экран программой. I, 2 — аппроксимирующие прямые для спада активностей  $^{64}\text{Cu}$  и  $^{62}\text{Cu}$  соответственно.

$$\frac{1}{j_{\max} - k_{\max}} \sum_j \left\{ n_j - \varepsilon \sum_k [A_k Y_k e^{-\lambda_k t_{j,k}}] \right\}^2 = \chi \rightarrow \min. \tag{3}$$

Отсюда получим систему из  $k_{\max}$  линейных уравнений относительно искомым активностей  $A_k$ . Эти значения вместе с соответствующими значениями периодов полураспада, выходов и  $\chi^2$  выводятся программой в качестве результата.

**Второй вариант.** Радионуклидный состав пробы предполагается неизвестным. Первоначально используется массив интенсивностей  $n_j$  и значений астрономического времени  $t_j = t_c + \tau_j + \Delta t_j/2$ , соответствующих середине интервала измерения каждого значения интенсивности (поправки (1) не могут быть использованы, так как первоначально неизвестны периоды полураспада). Программа строит на дисплее персонального компьютера в произвольном масштабе двумерное представление этих данных, по оси ординат отложены значения логарифмов  $\ln(n_j)$ , а по оси абсцисс — значения  $t_j$  (рис. 3, точки).

Поскольку, как оговорено выше, проба содержит несколько радионуклидов с существенно разными периодами полураспада, то начиная с какого-то момента времени  $t_j$  в пробе практически останется не распавшимся только один радионуклид (с наименьшей постоянной распада  $\lambda_1$ ), который обозначим индексом  $k = 1$ . С этого момента значения  $\ln(n_j)$  будут группироваться вблизи прямой линии с тангенсом угла наклона, равным  $-\lambda_1$ , и значением ординаты, равным  $\ln(A_1)$  при  $t_j = 0$ .

Программа предоставляет возможность визуально выделить соответствующую область с помощью двух маркеров (показаны штриховыми линиями на рис. 3) со значениями абсцисс соответственно  $t_{j1}$  и  $t_{r1}$  (отсчеты, соответствующие  $j = j_{j1}$  и  $j = j_{r1}$ ). Далее программа по точкам между маркерами методом наименьших квадратов строит вышеупомянутую прямую и находит соответствующие значения  $\lambda_1$ ,  $A_1$ .

Затем для диапазона отсчетов  $\{j_{j1} - j_{r1}\}$  программа выполняет коррекцию значений абсцисс  $t_j$  (т.е. значений текущего времени после завершения облучения для каждой измеренной интенсивности  $n_j$ ) по найденному значению  $\lambda_1$  в соответствии с формулами (1) и (2). Далее программа по точкам между маркерами вновь строит вышеупомянутую прямую со скорректированными значениями абсцисс, находит уточненные значения  $\lambda_1$  и  $A_1$ , а также выбирает имя радионуклида с ближайшей к найденному значению постоянной распада из встроенной библиотеки. Затем программа вычитает из значений  $n_j$  расчетные интенсивности, соответствующие распаду радионуклида  $k = 1$ , формируя новый массив интенсивностей  $n'_j$  и отображая его на дисплее, при этом отрицательные значения  $n'_j$ , если таковые возникают, полагаются равными нулю.

После этого повторяется вышеописанная процедура определения  $\lambda_2$  и  $A_2$  для следующего по величине постоянной распада радионуклида и т.д. Процедура продолжается, пока значения интенсивностей  $n'_j$  не становятся сравнимыми с фоном. Это будет означать, что в пределах чувствительности другие радионуклиды не могут быть обнаружены.

Количество  $m$  определяемого элемента в пробе по активности  $A$  активируемого радионуклида может быть найдено через известное [3] соотношение между активностью и массой (для случая постоянства потока нейтронов):

$$A = 6.02 \cdot 10^{23} \frac{m}{M_I} \theta \sigma \Phi G [1 - e^{-\lambda t_{irr}}] e^{-\lambda t_c}, \quad (4)$$

где  $\theta$  – распространенность изотопа определяемого элемента, активация которого используется в анализе;  $M_I$  – его грамм-атом;  $\sigma$  – сечение активации;  $\Phi$  – поток нейтронов в угол  $4\pi$ , определяемый через отсчет монитора;  $G$  – геометрический фактор, определяющий долю потока, проходящую через тестируемый образец.

Созданная методика была апробирована при калибровке монитора потока нейтронов от генератора НГ-150. В качестве образца (активационного детектора) была использована медная фольга высокой химической чистоты с естественным изотопным составом  $^{63}\text{Cu}$  (69.2%) и  $^{65}\text{Cu}$  (30.8%).

При облучении  $^{63}\text{Cu}$ ,  $^{65}\text{Cu}$  быстрыми нейтронами ( $E_n = 14$  МэВ) в результате пороговых ( $E_n \sim 10$  МэВ) ядерных реакций  $^{63}\text{Cu}(n, 2n)^{62}\text{Cu}$  ( $\sigma =$

$= 551$  мб [4]) и  $^{65}\text{Cu}(n, 2n)^{64}\text{Cu}$  ( $\sigma = 968$  мб [4]) образуются радионуклиды, являющиеся позитронными излучателями с периодами полураспада 9.74 мин и 12.7 ч соответственно. Активационные детекторы были изготовлены в виде дисков толщиной 1 мм и диаметром 10 мм и установлены на расстоянии 10 см от центра нейтронной мишени генератора НГ-150. Время облучения составило 30 мин.

Изменение скорости счета  $\gamma$ -совпадений со временем измерялось сцинтилляционным спектрометром (см. блок-схему измерения, рис. 1) непрерывно следующими циклами по 60 с в течение 30 мин, затем циклами по 600 с в течение 20 ч. По измеренным данным программой автоматически строила в полулогарифмическом масштабе график зависимости спада активности со временем (рис. 3). Его обработка вышеописанным способом дала значения начальных активностей и периодов полураспада:  $T_{1/2} = 45906.5$  с – для долгоживущей компоненты и 588.2 с – для короткоживущей, что с погрешностью 1% соответствует табличным данным [5] для радионуклидов  $^{64}\text{Cu}$  и  $^{62}\text{Cu}$ . Радионуклиды были идентифицированы по встроенной базе данных. Через найденные начальные активности  $^{64}\text{Cu}$  и  $^{62}\text{Cu}$  по соотношению (4) были найдены значения потока быстрых нейтронов  $\Phi = 2.55 \cdot 10^9$  нейтронов/с и  $\Phi = 2.36 \cdot 10^9$  нейтронов/с соответственно, которые совпали в пределах 8%, что подтвердило корректность методики и программного обеспечения.

В дальнейшем с использованием этой методики было измерено содержание легких элементов ( $^{13}\text{N}$ , Si и  $^{55}\text{Mn}$ ) в искусственных алмазах массой 40–150 мг [5]. Содержание азота в образцах было определено на уровне 0.33%. Для контроля методики анализ этих же образцов проводился относительным методом (с использованием меламина  $\text{C}_3\text{H}_6\text{N}_6$ ) спектрометром на базе НРGe-детектора с эффективностью регистрации 20%. Содержание азота при этом составило  $\sim 0.36\%$ , что хорошо соответствует результатам вышеописанной методики.

## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Муминов В.А., Навалихин Л.В. Активационный анализ с использованием нейтронного генератора. Ташкент: “Фан”, 1979.
2. Артемов С.В., Бажаждин А.Г., Буртебаев Н. и др. // ПТЭ. 2009. № 1. С. 168.
3. Кузнецов Р.А. Активационный анализ. Изд. 2-е. М.: Атомиздат, 1974.
4. Бычков В.М., Манохин В.Н., Пащенко А.Б. и др. Сечения пороговых реакций, вызываемых нейтронами. Справочник. М.: Энергоиздат, 1982.
5. Ибрагимова Э.М., Калонов М.У., Каюмов М.А. и др. // Матер. VI Международной научной конференции “Радиационно-термические эффекты и процессы в неорганических материалах”. Томск: Изд-во ТПУ, 2008. С. 717.