

УДК 621.039.665

ЕФЕКТИВНІСТЬ ВИКОРИСТАННЯ ГАММА-СПЕКТРОМЕТРІЇ ДЛЯ РЕЄСТРАЦІЇ НИЗЬКИХ ПИТОМИХ АКТИВНОСТЕЙ АМЕРИЦІУ-241 В ОБ'ЄКТАХ РАДІОЛОГІЧНОГО КОНТРОЛЮ

А.П. Лашко, Т.М. Лашко (ІЯД НАН України, м. Київ)

Описані методики та напівпровідникові гамма-детектори для спектрометрії гамма-випромінюючих радіонуклідів. Визначені нижні рівні детектування ^{241}Am у пробах ґрунту, повітря, води та біологічних об'єктах із зони аварії на ЧАЕС. Подані рекомендації щодо доцільності використання методів гамма-спектрометрії в залежності від рівнів та ізотопного складу забруднення.

1 ВСТУП

Забруднення довкілля радіоактивними елементами зумовило необхідність розробки ефективних методів їх моніторингу. Особливу увагу тривалим впливом на навколишнє середовище внаслідок великих періодів напіврозпаду і активною міграцією в біологічних ланцюгах привертають актиноїди – трансуранові і трансплутонієві елементи. Традиційно для їх моніторингу використовують радіохімічний метод, який на сьогоднішній день залишається найбільш чутливим, але високі трудомісткість та вартість робіт лімітують масштаби радіохімічних досліджень. Необхідність моніторингу величезних територій після аварії на Чорнобильській АЕС змістила акценти в бік гамма-спектрометричного методу, який базується на реєстрації гамма- і рентгенівських квантів [1]. На жаль ^{241}Am – єдиний з довгоіснуючих актиноїдів, який має зручну для вимірювання та достатньо інтенсивну гамма-лінію.

На допомогу приходять метод ізотопних кореляцій, який можна використовувати, якщо між концентраціями радіонуклідів існують постійні співвідношення. На відміну від радіонуклідів легких елементів (йоду, телуру та цезію) забруднення природного середовища ближньої зони ЧАЕС трансурановими і трансплутонієвими елементами обумовлено їх перебуванням в складі паливних частинок. Характерною особливістю проб ґрунту чи інших складових навколишнього середовища, що містять переважно паливні частинки, є близькість експериментальних до розрахованих для 4-го блоку ЧАЕС радіонуклідних співвідношень “нелетючих” елементів. Іншими словами, такого роду проби можна вважати репрезентативними для передаварійного палива.

В перші роки після аварії на ЧАЕС концентрацію плутонію в зоні відчуження оцінювали за коефіцієнтом кореляції $^{144}\text{Ce}/\text{Pu}$ [2]. В даний час, внаслідок розпаду ^{144}Ce , здійснити це неможливо. Тому сьогодні більш перспективним вважається визначення вмісту трансуранових елементів за результатами вимірювання інтенсивності гамма-випромінювання ^{241}Am . Коефіцієнт кореляції можна отримати або за даними радіохімічних аналізів, або, як пропонується в роботі [3], за даними рентгено-спектрометрії.

Незважаючи на оперативність і порівняно низьку собівартість гамма-спектрометричного методу детектування ^{241}Am , успіх його безпосереднього застосування залежить від ряду чинників. Виконана робота присвячена з'ясуванню можливості визначення вмісту ^{241}Am в зразках об'єктів

навколишнього середовища, відібраних у зоні відчуження ЧАЕС, в залежності від реально існуючих рівнів та ізотопного складу забруднення, а також наявної напівпровідникової гамма-спектрометричної апаратури.

2 МЕТОДИКА ДОСЛІДЖЕНЬ

2.1 Термінологія

Межа детектування – це термін, який використовується для визначення детектуючих можливостей вимірювальної системи за певних умов [5, 6]. Оцінка найменшої активності гамма-випромінюючого радіонукліда, яка може бути зареєстрована за час вимірів, може бути розрахована кількома різними способами. Найбільш поширений вираз для оцінки межі детектування, яку часто називають нижнім рівнем детектування (Lower limit detection – LLD) і який містить 5 % ризику помилкового твердження, що активність є, та 95 % імовірності детектування наявної активності, наступний [7]:

$$LLD = \frac{4,66 \cdot S_b}{\varepsilon \cdot P_\gamma}, \quad (1)$$

де $S_b = \sqrt{S_f / t}$ – оцінена середньоквадратична похибка швидкості лічби імпульсів в фотопіці, S_f – площа фону в області фотопіка, t – тривалість експозиції;

ε – ефективність реєстрації спектрометра при даній енергії;

P_γ – абсолютна інтенсивність γ -лінії.

Другий термін, зазвичай пов'язаний з межею детектування, мінімальна детектована концентрація (MDC), може бути записаний у вигляді:

$$MDC = \frac{4,66 S_b}{\varepsilon \cdot P_\gamma \cdot W}, \quad (2)$$

де W – маса зразка (кг).

Як видно з виразів (1) та (2), факторами, що впливають на рівні детектування, є ефективність реєстрації спектрометра, кількість речовини в пробі (маса або об'єм), тривалість експозиції (пов'язана з S_b) та величина фону. Для отримання низького рівня детектування ефективність реєстрації повинна бути високою, маса зразка достатньо великою, тривалість експозиції має бути якомога довшою, а фон якомога нижчим. Геометрія вимірів дуже впливає на ефективність реєстрації. Вона зменшується, коли зростає об'єм проби (а отже і відстань від детектора). Таким чином, щоб досягти низьких рівнів детектування, потрібно використовувати оптимальні розміри проб і геометрію вимірів. Подвоєння тривалості експозиції покращує рівні детектування лише в $\sqrt{2}$ раз, тому для їх зменшення вдвічі час вимірів треба збільшити в 4 рази. Власний фон спектрометра потрібно зробити настільки низьким, наскільки це можливо. Кількість і тип радіонуклідів у γ -спектрі суттєво впливають на рівень фону в області комптонівського розсіяння. Тому рівні детектування для радіонуклідів з більш низько-енергетичними γ -лініями (які знаходяться на комптонівському розподілі) будуть вищими.

2.2 Апаратура

Особливість гамма-спектрів проб із зони аварії на ЧАЕС полягає в тому, що питома активність ^{137}Cs на два порядки (а в районах цезієвих плям на чотири порядки) більша за питому активність інших ізотопів. Найбільш інтенсивні гамма-лінії у них до того ж мають енергію, меншу за 661 кеВ, і тому знаходяться на комптонівському фоні від $\gamma 661$ кеВ ^{137}Cs . Ця обставина змушує висувати підвищені вимоги до спектрометричної апаратури, такі як роздільна здатність, ефективність реєстрації, відношення фотопік/комптон тощо.

Сьогодні в світі виготовляють велику кількість напівпровідникових гамма-детекторів, різноманітних за своїм призначенням та характеристиками. Так, лише компанія ORTEC випускає понад 100 типів детекторів, які можна об'єднати в шість основних серій [4]. Їх характеристики подано в табл. 1. Аналогічні за своїми характеристиками типи напівпровідникових гамма-детекторів можна знайти і в каталозі компанії CANBERRA. В останньому рядку таблиці подано характеристики коаксіальних Ge(Li)-детекторів серії ДГДК виробництва СРСР, які ще досить поширені.

Таблиця 1. Характеристики основних типів напівпровідникових детекторів виробництва компанії ORTEC

Тип детектора	Геометрія	Товщина вхідного вікна, мкм	Робочий діапазон енергій, кеВ	Матеріал	Розмір кристала	Роздільна здатність
HPGe Coax (GEM Series)	Коаксіальний з закритим кінцем	600	40–10 000	HPGe P-типу	Ефективність (10–100) %	1,75–2,30 кеВ на $\gamma 1332$ кеВ ^{60}Co
GAMMA-X (GMX Series)	Коаксіальний з тонким вхідним вікном	0,3	3–10 000	HPGe N-типу	Ефективність (10–80) %	1,80–2,40 кеВ на $\gamma 1332$ кеВ ^{60}Co 665–1200 еВ на $\gamma 5,9$ кеВ ^{55}Fe
HPGe Well (GWL Series)	Типу «колодязь»	0,3	10–10 000	HPGe P-типу	Активний об'єм до 400 см ³	2,10–2,30 кеВ на $\gamma 1332$ кеВ ^{60}Co 1,20–1,40 кеВ на $\gamma 122$ кеВ ^{57}Co
HPGe LEPS (GLP Series)	Планарний	0,3	3–600	HPGe P-типу	Діаметр (6–36) мм	165–365 еВ на $\gamma 5,9$ кеВ ^{55}Fe 480–595 еВ на $\gamma 122$ кеВ ^{57}Co
LO-AX	Короткий коаксіальний з тонким вхідним вікном	0,3	3–1 000	HPGe N-типу	Діаметр (36–60) мм	300–495 еВ на $\gamma 5,9$ кеВ ^{55}Fe 585–720 еВ на $\gamma 122$ кеВ ^{57}Co
Si(Li) LEPS (SLP Series)	Планарний	0,1	1–30	Si(Li)	Діаметр (4–16) мм	160–250 еВ на $\gamma 5,9$ кеВ ^{55}Fe
ДГДК	Коаксіальний з закритим кінцем	600	40–10 000	Ge(Li)	Ефективність (2–16) %	2,0–5,0 кеВ на $\gamma 1332$ кеВ ^{60}Co

Детектори серій GEM, GMX, GLP та LO-AX за своїми технічними характеристиками можуть бути використані для детектування ^{241}Am . Si(Li)-детектори серії SLP призначені для спектроскопії рентгенівського випромінювання в низькоенергетичній області (до 30 кеВ). HPGe-детектори серії GWL застосовуються для аналізу невеликих за розміром ($\varnothing 1,45 \times 4,0$ см) низькоактивних проб у 4π -геометрії і малопридатні для вимірювання вмісту ^{241}Am в зразках об'єктів навколишнього середовища, відібраних у зоні відчуження ЧАЕС.

Автори мали можливість провести дослідження на детекторах серій GMX, GEM, GLP, ДГДК та антикомptonівському гамма-спектрометрі фірми CANBERRA (модель GR-1519), характеристики яких наведено в табл. 2.

Таблиця 2. Напівпровідникові детектори на яких були проведені дані дослідження

Тип детектора	Розмір	Роздільна здатність
GMX-30190	Ефективність 32,5 %	1,89 кеВ на 1,33 МеВ ^{60}Co
GEM-40195	Ефективність 43,0 %	1,73 кеВ на 1,33 МеВ ^{60}Co
GLP-36360/13	$\varnothing 36$ мм	580 еВ на 122 кеВ ^{57}Co
ДГДК-80	Ефективність 8,7 %	2,55 кеВ на 1,33 МеВ ^{60}Co
GR-1519	Ефективність 15 %	1,9 кеВ на 1,33 МеВ ^{60}Co

Для вимірів гамма-спектрів було використано гамма-спектрометр на базі вищезгаданих напівпровідникових детекторів та багатоканального буфера 919 SPECTRUM MASTER, до складу якого входить амплітудо-цифровий перетворювач (АЦП) з фіксованим часом перетворення 7 мкс. Всі детектори мали стандартний пасивний захист (10 см Pb + Cd + Cu + Al). В антикомptonівському гамма-спектрометрі GR-1519 використовується АЦП з фіксованим часом перетворення 0,8 мкс. Для цього гамма-спектрометра коефіцієнт зменшення комptonівського фону від ^{137}Cs сягає 8.

2.3 Вибір оптимальної геометрії вимірів

При визначенні вмісту гамма-випромінюючих радіонуклідів, гамма-лінії яких знаходяться в низькоенергетичній області спектру, особливе значення для низькоактивних зразків має вибір оптимальної геометрії вимірів та оптимальної товщини проби. Очевидно, що для коаксіального детектору оптимальною буде 4π -геометрія, а для планарного детектора – 2π -геометрія, тобто щось подібне до посудини Марінеля з мінімальним об'ємом у першому випадку та точкового джерела впритул до детектора – у другому випадку. Але на практиці ці вимоги здебільшого неможливо виконати, оскільки завжди доводиться знаходити оптимальний варіант між збільшенням кількості речовини та погіршенням геометрії експерименту. Тілесний кут геометрії вимірювання прямо пропорційно залежить від площі кристалу, тому бажано використовувати детектори з великою площею поверхні.

При визначенні вмісту ^{241}Am в об'ємних пробах об'єктів навколишнього середовища з районів, забруднених внаслідок аварії на ЧАЕС, було досліджено різні геометрії. Для характеристики геометрії вимірів у випадку об'ємного джерела випромінювання зручно ввести термін “коефіцієнт ефективності геометрії” (k_{eff}), що дорівнює відношенню ефективностей реєстрації спектрометра для об'ємного та точкового джерел.

В табл. 3 наведені експериментальні значення коефіцієнта ефективності геометрії (k_{eff}) для $\gamma 59$ кеВ ^{241}Am для різних типів детекторів та різних за товщиною джерел випромінювання.

Таблиця 3. Експериментальні значення коефіцієнта ефективності геометрії (k_{eff}) для $\gamma 59$ кеВ ^{241}Am для різних типів детекторів та різних за товщиною джерел випромінювання

Тип детектора	Діаметр кристала, мм	k_{eff} для $\gamma 59$ кеВ ^{241}Am	
		Джерело $\varnothing 70 \times 20$ мм; m = 100 г	Джерело $\varnothing 70 \times 40$ мм; m = 200 г
GMX-30190	55	$0,51 \pm 0,04$	$0,28 \pm 0,03$
GEM-40195	60	$0,35 \pm 0,03$	$0,21 \pm 0,03$
GLP-36360/13	36	$0,37 \pm 0,03$	$0,21 \pm 0,03$
ДГДК-80	40	$0,32 \pm 0,10$	$0,18 \pm 0,06$

Видно, що значення коефіцієнту ефективності геометрії для різних типів детекторів майже однакові. Деякі розбіжності обумовлені конструктивними особливостями, такими як відстань від кристала до корпусу детектора тощо. Оскільки детектори мали різні розміри кристалів, можна зробити висновок, що варіювання діаметру проби в розумних межах (близьких до розмірів кристалів) мало впливає на коефіцієнт ефективності геометрії. Збільшення товщини проби в два рази (від ~ 3 до ~ 6 г/см²) призводить до погіршення коефіцієнта ефективності геометрії в 1,7–1,8 рази внаслідок зменшення тілесного кута та збільшення самопоглинання в пробі. Це означає, що площа піку повного поглинання $\gamma 59$ кеВ ^{241}Am при збільшенні маси проби в два рази збільшується лише на 10–20 %, тоді як фон зростає майже прямо пропорційно активності проби і, таким чином, погіршується відношення фотопик/фон.

3 ВИЗНАЧЕННЯ НИЖНІХ РІВНІВ ДЕТЕКТУВАННЯ ^{241}Am НАПІВПРОВІДНИКОВИМИ ДЕТЕКТОРАМИ РІЗНИХ СЕРІЙ В ЗАЛЕЖНОСТІ ВІД СПІВВІДНОШЕННЯ Cs/Am В ПРОБАХ

3.1 Визначення нижніх рівнів детектування ^{241}Am для об'ємних джерел випромінювання

Для визначення нижніх рівнів детектування ^{241}Am в пробах об'єктів навколишнього середовища гамма-спектрометрами на базі напівпровідникових детекторів різних типів були використані калібрувальні об'ємні джерела випромінювання, а також 23 проби ґрунту, відібрані в напрямках південного, південно-західного, західного, північно-західного та північно-східного слідів викиду радіонуклідів з рівнями забруднення місцевості ^{137}Cs від 4 до 1200 Ки/км² та співвідношеннями Cs/Am від 60 до 7000 [8]. Їх характеристики подано в табл. 4.

На рис. 1–4 для гамма-спектрометрів з напівпровідниковими детекторами GMX-30190, GEM-40195, GLP-36360/13 та для антикомптонівського гамма-спектрометра GR-1519 наведено експериментальні значення нижніх рівнів детектування ^{241}Am в оптимальній геометрії для об'ємних джерел

випромінювання (тривалість експозиції 10000 с) в залежності від співвідношення Cs/Am та апроксимацію цієї залежності за методом найменших квадратів прямою лінією. Там, де експериментальні похибки не приведені, вони не перевищують розмірів точок.

Таблиця 4. Ізотопний склад калібровочних об'ємних джерел випромінювання

№ проби	¹³⁷ Cs, Бк	²⁴¹ Am, Бк	Cs/Am
1	0	12,0 ± 0,5	0
2	478 ± 11	12,0 ± 0,5	39,8 ± 1,9
3	17500 ± 500	333 ± 10	53 ± 2
4	238 ± 6	3,8 ± 0,3	63 ± 5
5	956 ± 21	12,0 ± 0,5	80 ± 4
6	4810 ± 120	48,2 ± 2,2	100 ± 5
7	208 ± 6	2,01 ± 0,24	103 ± 12
8	339 ± 8	3,13 ± 0,28	108 ± 10
9	41100 ± 1000	293 ± 16	140 ± 7
10	54900 ± 1400	356 ± 11	154 ± 5
11	6450 ± 160	39,3 ± 1,6	164 ± 7
12	1410 ± 40	5,4 ± 0,7	260 ± 30
13	7730 ± 190	28,5 ± 1,4	271 ± 14
14	1950 ± 50	6,5 ± 0,6	300 ± 30
15	1910 ± 50	6,2 ± 0,6	310 ± 30
16	15400 ± 400	38,3 ± 1,9	400 ± 20
17	22500 ± 600	53,9 ± 2,4	420 ± 20
18	25400 ± 600	54,3 ± 2,8	470 ± 20
19	46500 ± 1200	74 ± 3	630 ± 30
20	3090 ± 80	3,6 ± 0,6	860 ± 150
21	73200 ± 1800	49 ± 3	1490 ± 100
22	44000 ± 1100	28,2 ± 2,2	1560 ± 130
23	18300 ± 500	8,8 ± 1,4	2100 ± 300
24	8200 ± 210	3,0 ± 1,0	2700 ± 900
25	22100 ± 600	4,5 ± 1,6	4900 ± 1800
26	35000 ± 900	4,7 ± 2,0	7000 ± 3000

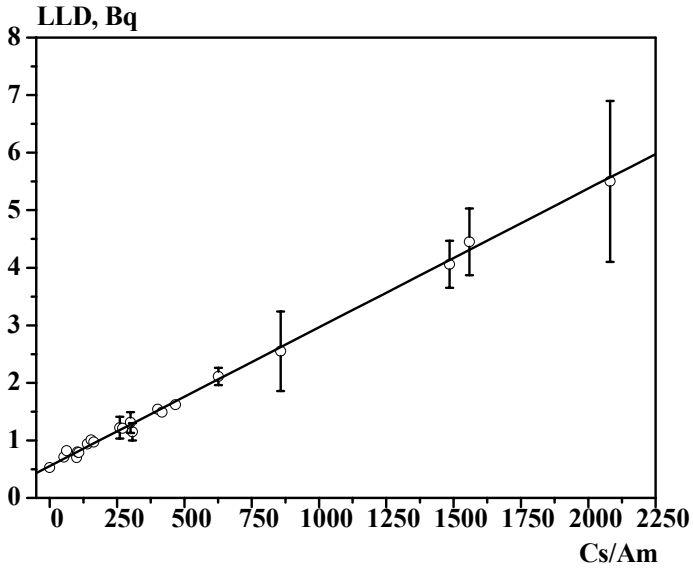


Рис. 1. Експериментальні значення нижніх рівнів детектування (LLD) ^{241}Am напівпровідниковим детектором типу GMX-30190

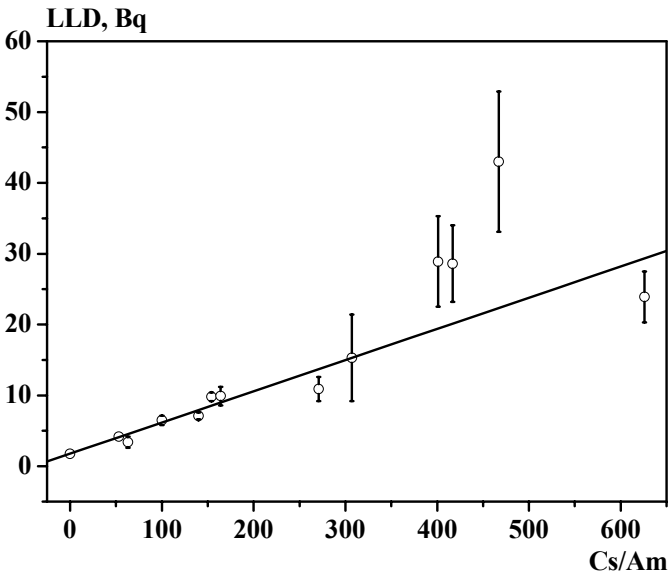


Рис. 2. Експериментальні значення нижніх рівнів детектування (LLD) ^{241}Am напівпровідниковим детектором типу GEM-40195

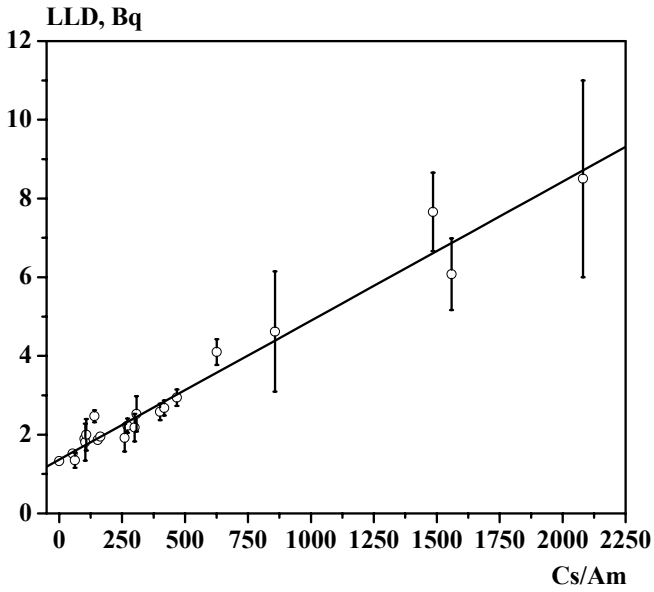


Рис. 3. Експериментальні значення нижніх рівнів детектування (LLD) ^{241}Am напівпровідниковим детектором типу GLP-36360/13

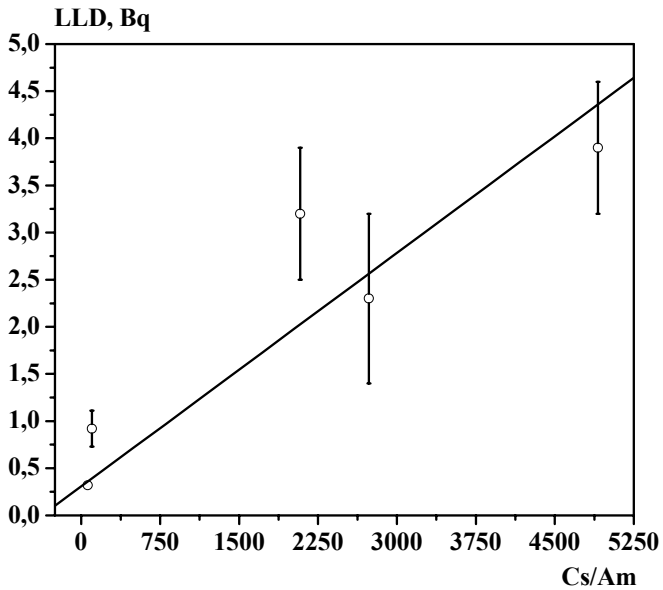


Рис. 4. Експериментальні значення нижніх рівнів детектування (LLD) ^{241}Am антикомptonівським гамма-спектрометром GR-1519

В результаті проведених досліджень було встановлено:

1. Детектори серії ДГДК внаслідок низького співвідношення фотопик/комптон не придатні для визначення вмісту ^{241}Am в пробах об'єктів навколишнього середовища з району аварії на ЧАЕС навіть з "паливним" співвідношенням Cs/Am. Підвищення питомої активності проби не покращує ситуації, оскільки внаслідок великої загрози детектора вимірювання стає неможливим.
2. Детектори серії GEM можна використовувати при співвідношенні Cs/Am < 800, але внаслідок наявності достатньо товстого поглинаючого шару (~ 600 мкм) вони за величиною нижніх порогових рівнів детектування ^{241}Am приблизно на порядок програють детекторам серії GMX та GLP, які до того ж можуть використовуватися і при більш широких (≤ 2000) співвідношеннях Cs/Am.
3. Антикмптонівський гамма-спектрометр GR-1519 можна успішно використовувати при співвідношеннях Cs/Am < 5000. Беззаперечно, він має перевагу перед усіма розглянутими раніше типами гамма-спектрометрів, але достатньо висока вартість (~ \$ 200000) обмежує його застосування, до того ж чутливість традиційного радіохімічного методу залишається майже на два порядки вищою – близько 0,005 Бк.

3.2 Дискусія

Як видно з рис. 1–4, експериментальні значення нижніх рівнів детектування ^{241}Am залежно від співвідношення Cs/Am добре апроксимуються прямою лінією. Цей факт легко пояснити виходячи з наступних міркувань.

Дійсно, фон в області фотопіка $\gamma 59$ кеВ ^{241}Am при вимірюванні проб, забруднених внаслідок аварії на ЧАЕС, можна подати у вигляді

$$F = F_{sp} + F_{am} + F_{cs}, \quad (3)$$

де F_{sp} – власний фон гамма-спектрометра;

F_{am} – фон від ^{241}Am , ^{154}Eu та ^{155}Eu ;

F_{cs} – фон, обумовлений комптонівським розсіянням $\gamma 661$ кеВ ^{137}Cs у детекторі.

Введемо коефіцієнт α , який дорівнює відношенню активності ^{137}Cs до активності ^{241}Am в пробі. В цьому випадку фон, обумовлений ^{137}Cs можна записати у вигляді

$$F_{cs} = k \cdot \alpha \cdot F_{am}, \quad (4)$$

де k – коефіцієнт пропорційності.

В області достатньо високих відношень Cs/Am (~100) першими двома складовими частинами фону в (3) можна знехтувати.

Нехай маємо дві проби, одна із співвідношенням Cs/Am = α_1 , а друга – α_2 ($\alpha_2 > \alpha_1$). Активність ^{241}Am у першій пробі відповідає нижньому рівню детектування. Потрібно знайти, яка активність ^{241}Am у другій пробі відповідає нижньому рівню детектування якщо Cs/Am = α_2 .

Позначимо через S_{am} – площу фотопіка $\gamma 59$ кеВ ^{241}Am , а через $S_f = F_{cs}$ – площу фону під піком. Оскільки $S_f \gg S_{am}$ в області достатньо високих значень α , то відносна похибка визначення площі піка $\gamma 59$ кеВ ^{241}Am для проби 1 становить:

$$\frac{dS_{am}(1)}{S_{am}(1)} = \frac{\sqrt{S_f(1) + S_{am}(1)}}{S_{am}(1)} \approx \frac{\sqrt{S_f(1)}}{S_{am}(1)} = \frac{\sqrt{k\alpha_1 F_{am}(1)}}{S_{am}(1)}. \quad (5)$$

Згідно з визначенням нижнього рівня детектування потрібно отримати таку ж відносну похибку визначення площі і для проби із співвідношенням α_2 та активністю ^{241}Am , що відрізняється в β разів.

$$\frac{dS_{am}(2)}{S_{am}(2)} \approx \frac{\sqrt{S_f(2)}}{S_{am}(2)} = \frac{\sqrt{k\alpha_2\beta F_{am}(1)}}{\beta S_{am}(1)}. \quad (6)$$

Порівнюючи вирази (5) та (6) маємо:

$$\beta = \frac{\alpha_2}{\alpha_1}, \quad (7)$$

тобто активність ^{241}Am (нижній рівень детектування) збільшиться пропорційно зміні співвідношення Cs/Am, що і спостерігається в умовах експерименту.

4 КРИТЕРІЙ ДОЦІЛЬНОСТІ ВИКОРИСТАННЯ ГАММА-СПЕКТРОМЕТРИЧНОГО МЕТОДУ ВИЗНАЧЕННЯ ВМІСТУ ^{241}Am В ПРОБАХ ОБ'ЄКТІВ НАВКОЛИШНЬОГО СЕРЕДОВИЩА В ЗАЛЕЖНОСТІ ВІД РІВНІВ ТА ІЗОТОПНОГО СКЛАДУ ЇХ ЗАБРУДНЕННЯ

4.1 Визначення щільності забруднення територій ^{241}Am

Відомо, що щільність забруднення територій внаслідок Чорнобильської катастрофи коливається в досить широких межах – від майже фонових рівнів до (740000–1110000) Бк/м² поблизу ЧАЕС. При цьому співвідношення активностей Cs/Am може змінюватись, починаючи від “паливних” значень ~ 50–60 (за станом на 1997 р.), до ~ 10⁵ в місцях окремих “цезієвих плям”. Застосування гамма-спектрометричного методу визначення вмісту ^{241}Am у ґрунтах в усій області змін зазначених характеристик забруднення, звісно, не виявляється можливим.

При дослідженні щільності забруднення місцевості відбір проб здійснюється на цілих ділянках за допомогою циліндричних пробовідбірників діаметром 14 см на глибину до 5–20 см в залежності від інтенсивності міграції радіонуклідів у типових ґрунтах. Проте, на непорушених ділянках ближньої зони ЧАЕС більше ніж 90 % ^{241}Am поки що знаходиться у верхньому п'ятисантиметровому шарі ґрунту. Зважаючи на цей факт, легко розрахувати, що при щільності забруднення, наприклад, 3700 Бк/м² в аліквотах ґрунту вагою 100 г міститься ~ 5 Бк ^{241}Am . Зауважимо, що саме такі маси об'ємних калібровочних джерел було використано при визначенні оптимальної геометрії та нижніх порогових рівнів детектування ^{241}Am (див. табл. 3 та рис. 1–4).

В такий спосіб, спираючись на отримані раніше залежності нижніх рівнів детектування ^{241}Am від співвідношення Cs/Am (див. рис. 1–4), були розраховані області доцільності (робочі області) застосування гамма-спектрометричного методу для дослідження щільності забруднення території ^{241}Am [9]. Результати розрахунків для різних типів напівпровідникових детекторів подано на рис. 5–6.

Як бачимо, використання гамма-спектрометричного методу визначення щільності забруднення території ^{241}Am можливе при наявності відповідної апаратури, починаючи з забруднень 500 Бк/м² при “паливному” співвідношенні

Cs/Am, до співвідношень $Cs/Am \leq 5000$, якщо щільності забруднення ≥ 3000 Бк/м². При більш низьких рівнях забруднення або більш високих співвідношеннях Cs/Am необхідно використовувати традиційні радіохімічні методи.

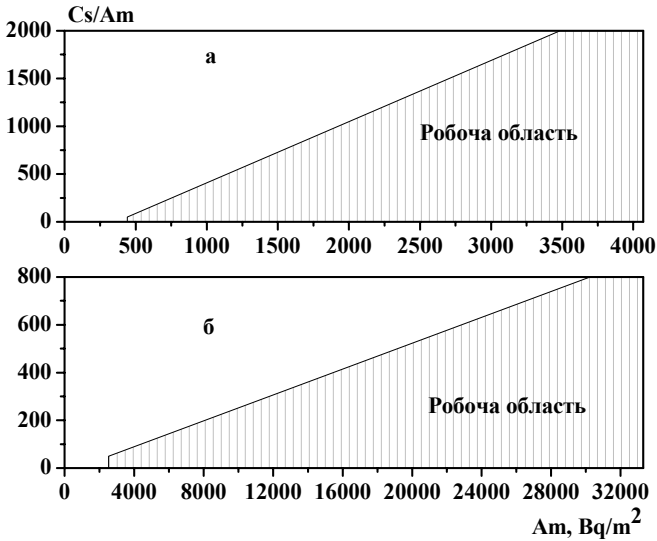


Рис. 5. Области доцільності використання гамма-спектрометрів з детекторами: а – GMX-30190 та б – GEM-40195 для визначення щільності забруднення території ^{241}Am

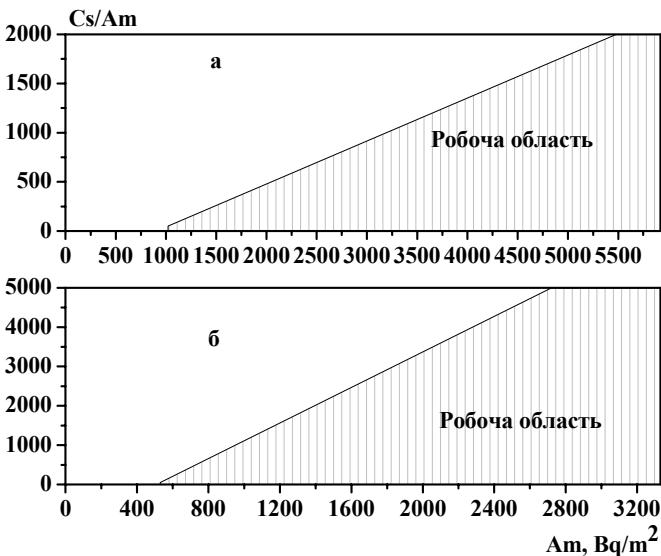


Рис. 6. Области доцільності використання гамма-спектрометрів з детекторами: а – GLP-36360/13 та б – GR-1519 для визначення щільності забруднення території ^{241}Am

4.2 Визначення вмісту ^{241}Am в повітрі

При визначенні забруднення повітряних мас радіоактивними елементами відбір проб проводиться за допомогою фільтровентиляційних установок. Оскільки концентрація радіонуклідів в повітрі невисока, необхідно прокачувати достатньо великі об'єми повітря – близько 50000 м^3 . Після закінчення прокачки фільтри пресуються в циліндри розмірами $\text{Ø}45 \times 10\text{ мм}$. Ця геометрія близька до оптимальної геометрії, розробленої для вимірювання вмісту ^{241}Am в об'ємних пробах. Тому, якщо відомі співвідношення Cs/Am у пробах повітря, то можна визначити нижні рівні детектування ^{241}Am різними типами гамма-спектрометрів користуючись безпосередньо рис. 1–4.

З метою отримання оперативної інформації щодо існуючих концентрацій радіоактивних елементів в повітрі було проведено вимірювання гамма-спектрів та виконано радіохімічний аналіз фільтрів після прокачки повітря на полігоні “Запілля” (шифр – ТЗФП), та на полігоні “Прип'ять” (шифр – ТЧФП), розташованому на відстані 1,5 км від об'єкта “Укриття” [8]. Для вимірів гамма-спектрів було використано гамма-спектрометр на базі напівпровідникового детектора GMX-30190. Результати досліджень наведено в табл. 5.

Таблиця 5. Вміст ^{241}Am в повітряних фільтрах

Шифр проби	Об'єм прокачаного повітря, м^3	^{241}Am , Бк/фільтр		Cs/Am
		Радіохімія	Гамма-спектрометрія	
55ТЧФП	50123	$1,5 \pm 0,1$	$2,0 \pm 0,5$	88 ± 8
59ТЧФП	40478	$0,26 \pm 0,03$	$0,5 \pm 0,3$	115 ± 15
109ТЧФП	44354	$0,95 \pm 0,04$	$1,1 \pm 0,4$	92 ± 6
111ТЧФП	40831	$1,4 \pm 0,1$	$1,6 \pm 0,4$	89 ± 8
175ТЧФП	51353	$0,23 \pm 0,02$	$0,5 \pm 0,3$	94 ± 10
139ТЗФП	36247	$0,017 \pm 0,002$	–	210 ± 30
153ТЗФП	54908	$0,024 \pm 0,002$	–	200 ± 30
161ТЗФП	36404	$0,016 \pm 0,003$	–	210 ± 50
221ТЗФП	39651	$0,045 \pm 0,004$	–	350 ± 40
249ТЗФП	9590	$0,033 \pm 0,003$	–	220 ± 30

Як видно з таблиці, в районі об'єкту “Укриття” маємо приблизно “паливне” відношення Cs/Am , в той же час на полігоні “Запілля” це відношення становить 200–300. Концентрації ^{241}Am у повітрі біля об'єкту “Укриття” достатні, щоб при об'ємах прокачки повітря близько 50000 м^3 застосовувати методи гамма-спектрометрії. Найбільш придатний для цього антикомptonівський гамма-спектрометр GR-1519. Гамма-спектрометр на базі напівпровідникового детектора GMX-30190 також можна використовувати, але похибки визначення ^{241}Am зростають. При збільшенні об'ємів прокачки повітря в півтора-два рази стає можливим також використання гамма-спектрометра з напівпровідниковим детектором GLP-36360/13. Для визначення вмісту ^{241}Am в фільтрах з полігону “Запілля” необхідно застосовувати радіохімічні методи.

4.3 Визначення вмісту ^{241}Am в пробах води та біологічних об'єктах

Області доцільності використання гамма-спектрометричного методу визначення вмісту ^{241}Am у воді та біологічних об'єктах розраховувались на підставі одержаних раніше даних про нижні порогові рівні детектування ^{241}Am (див.рис. 1–4). Області можливого застосування методу для різних типів детекторів зображені на рис. 7–8. Як видно з рисунків, використання гамма-спектрометричного методу визначення вмісту ^{241}Am можливе, починаючи з концентрацій близько 10 Бк/кг при “паливному” співвідношенні Cs/Am, до співвідношення Cs/Am < 5000 при більших концентраціях і наявності відповідної апаратури.

Для з'ясування реально існуючих на сьогоднішній день концентрацій ^{241}Am були відібрані проби ґрунтових вод, яблук, березового соку тощо. Відбір проб проводився як на найбільш забруднених місцях у зоні відчуження ЧАЕС, так і на територіях з низькими рівнями забруднення [8]. Відомо, що концентрації ^{241}Am в ґрунтових водах, а також у воді відкритих водоймищ поки що не перевищують $\sim 10^3$ Бк/л. Тому проби ґрунтових вод було відібрано із свердловин на проммайданчику ЧАЕС. Гілки дерев і березового соку відбирали з району “Рудого лісу”, де забруднення ^{241}Am досягає (300000–400000) Бк/м², та у с. Машево і смт. Димер, де рівні забруднення становлять ~ 15000 Бк/м² та ~ 100 Бк/м² відповідно. Результати радіохімічних аналізів проб подано в табл. 6.

Таблиця 6. Вміст ^{241}Am у воді та біологічних об'єктах

Вид проби	Місце відбору проби	Шифр проби	^{241}Am , Бк/кг	Cs/Am
Вода із свердловин	Проммайданчик	В76/14-1А	$8,5 \pm 0,7$	64 ± 6
—”—	ЧАЕС	В77/К-2	$0,22 \pm 0,03$	1500 ± 200
—”—	—”—	В72/10-1А	$0,023 \pm 0,004$	7700 ± 1300
—”—	—”—	В73/11-1А	$0,052 \pm 0,007$	19000 ± 3000
Гілки дерев	“Рудий” ліс	Д/РЛ-12	$0,017 \pm 0,002$	200000 ± 300000
—”—	“Рудий” ліс	Д/РЛ-14	$0,17 \pm 0,01$	800000 ± 100000
—”—	с. Машево	Д/МАШ-1	$0,030 \pm 0,004$	8400 ± 1200
—”—	сmt. Димер	Д/ДИМ-15	< 0,004	> 10000
Сік березовий	“Рудий” ліс	С/РЛ-6	$0,056 \pm 0,007$	340000 ± 50000
—”—	“Рудий” ліс	С/РЛ-7	$0,078 \pm 0,007$	45000 ± 4000
—”—	с. Машево	С/МАШ-1	$0,005 \pm 0,002$	22000 ± 9000
—”—	сmt. Димер	С/ДИМ-10	$0,003 \pm 0,001$	4600 ± 1600
Яблука	с. Машево	Я/МАШ-1	$0,035 \pm 0,007$	36000 ± 9000
—”—	сmt. Димер	Я/ДИМ-1	$0,019 \pm 0,006$	16000 ± 6000

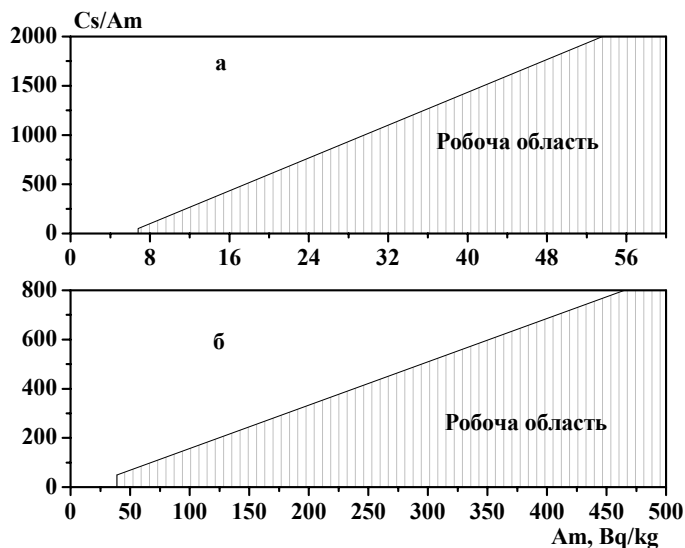


Рис. 7. Области доцільності використання гамма-спектрометрів з детекторами: а – GMX-30190 та б – GEM-40195 для визначення вмісту ^{241}Am в пробах води та біологічних об'єктах

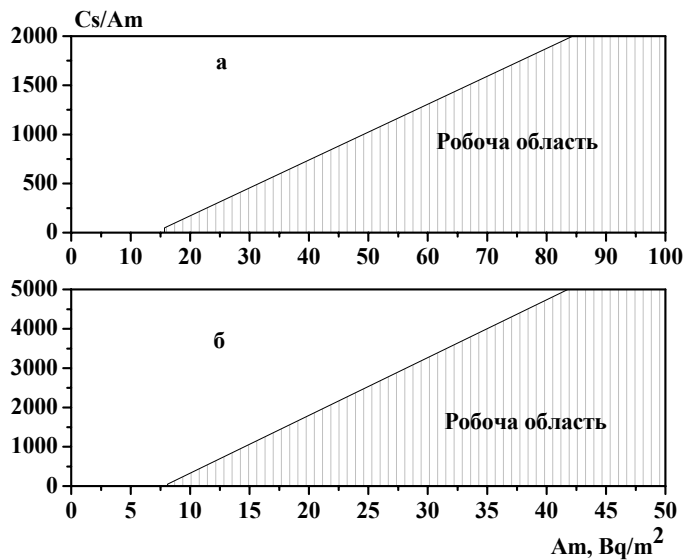


Рис. 8. Области доцільності використання гамма-спектрометрів з детекторами: а – GLP-36360/13 та б – GR-1519 для визначення вмісту ^{241}Am в пробах води та біологічних об'єктах

Як видно з табл. 6 та рис. 7–8, за винятком проб води з деяких свердловин на проммайданчику ЧАЕС визначення вмісту ^{241}Am методами гамма-спектрометрії в ґрунтових водах та біологічних об'єктах у зоні відчуження ЧАЕС неможливе як через низьку концентрацію ^{241}Am , так і через високі співвідношення Cs/Am, які можуть сягати до 10^6 . Тому в цьому випадку можливе використання лише радіохімічних методів.

5 ВИСНОВКИ

Проведені вимірювання і розрахунки свідчать про те, що на сьогоднішній день використання гамма-спектрометричного методу детектування ^{241}Am найбільш перспективне при дослідженні забруднення територій, оскільки ефективне у більш широкому діапазоні реально існуючих співвідношень Cs/Am та рівнів забруднення. Щодо прогнозу на майбутнє, то, як відомо, увесь ^{241}Am є продуктом β^- -розпаду ^{241}Pu ($T_{1/2} = 14$ років), напрацьованого за час кампанії до моменту аварії на 4-му енергоблоці ЧАЕС. Згідно з розрахунками [10], максимум активності ^{241}Am буде досягнуто в середині 2058 р. при умові “паливного” співвідношення $^{241}\text{Am}/^{241}\text{Pu}$. Порівняно з 2007 роком його активність збільшиться в 1,5 рази. До цього ж часу внаслідок розпаду активність ^{137}Cs зменшиться в 3 рази. Таким чином співвідношення Cs/Am зменшиться в 4,5 рази. Створяться найбільш сприятливі умови щодо визначення вмісту ^{241}Am в пробах об'єктів навколишнього середовища методами гамма-спектрометрії, якщо не враховувати, звичайно, процеси міграції радіонуклідів та вважати, що ядерно-фізична апаратура не зазнає суттєвих змін. Кількість об'єктів, доступних вимірюванню ^{241}Am методами гамма-спектрометрії, значно розшириться, але якісно (перелік об'єктів доступних для цього методу) залишиться практично без змін. Проте відзначимо, що перебіг процесів міграції радіонуклідів може істотно вплинути на придатність методу щодо визначення вмісту ^{241}Am у деяких компонентах природного середовища.

ЛІТЕРАТУРА

1. Strauss M.G., Sherman I.S., Pehl R.H. X/gamma-ray measurements of total activity in environmental samples without prior knowledge of isotopic abundance // Nucl. Instr. Meth. – 1982. – Vol. 193. – P. 203–208.
2. Беляев С.Т., Боровой А.А., Добрынин Ю.Л. Информационная система “Проба”: контроль радиоактивных загрязнений территории после аварии на Чернобыльской АЭС // Атомная энергия. – 1990. – Т. 68, вып. 3. – С. 197–201.
3. Бушуев А.В., Зубарев В.И., Петрова Е.В. и др. Развитие γ /рентгено-спектрометрической методики контроля загрязнения почвы ^{241}Am и Pu // Атомная энергия. – 1997. – Т. 82, вып. 2. – С. 117–125.
4. Instruments and systems for nuclear spectroscopy. EG&G ORTEC catalog. – Oak Ridge: EG&G ORTEC. – 1994.
5. Pasternack B.S. and Harley N.H. Detection limits for radionuclides in the analysis of multi-component gamma ray spectrometer data // Nucl. Instr. Meth. – 1971. – Vol. 91. – P. 533–540.

6. Head J.H. Minimum detectable photopeak areas in Ge(Li) spectra // Nucl. Instr. Meth. – 1972. – Vol. 98. – P. 419–428.
7. Measurement of radionuclides in food and the environment // Technical reports series No. 295. – IAEA, Vienna. – 1989.
8. Агєєв В.А., Вирічек С.Л., Лашко А.П. та ін.. Нижні порогові рівні детектування ^{241}Am напівпровідниковими спектрометрами в пробах, забруднених внаслідок аварії на ЧАЕС // Препр. НАН України, Міжгалуз. наук.-техн. центр “Укриття”, Чорнобиль, 98-2. – 1998. – 27 с.
9. Лашко А.П., Лашко Т.Н. Границы применимости полупроводниковых детекторов при определении содержания ^{241}Am в объектах окружающей среды // В кн. Междунар. конф. “Свойства возбужд. сост. атомных ядер и механизмы ядерных реакций” (LI Совещ. по ядерн. спектр. и структ. атом. яд.) Тез. докл. Саров. – 2001. – С. 262.
10. Пазухин Э.М., Дрозд И.П., Токаревский В.В. Авария на ЧАЭС и проблема америция-241 // Радиохимия. – 1994. – Т. 36, вып. 6. – С. 533–539.