

Метод определения глубины залегания источников гамма-излучения с использованием ксенонового гамма-спектрометра

© А.И. Маджидов, К.Ф. Власик, В.М. Грачев, В.В. Дмитренко, К.В. Кривова, С.Е. Улин, З.М. Утешев, А.Е. Шустов, М.Д. Тимашкова

Национальный исследовательский ядерный университет „МИФИ“,
115409 Москва, Россия
e-mail: aimadzhidov@mephi.ru

Поступило в Редакцию 11 ноября 2024 г.

В окончательной редакции 22 января 2025 г.

Принято к публикации 5 февраля 2025 г.

Радиоактивное загрязнение ядерно-физических объектов является серьезным препятствием при их эксплуатации и выводе их из эксплуатации. Предложен метод определения глубины залегания радиоактивных источников на основе анализа энергетических гамма-спектров, вычисления отношения площади пика полного поглощения к площади комптоновской долины. Предложенный метод опробован на различных поглотителях с применением ксенонового гамма-спектрометра в качестве регистрирующего устройства.

Ключевые слова: гамма-излучение, комптоновская долина, гамма-спектрометр, ксенон.

DOI: 10.61011/JTF.2025.06.60476.415-24

Введение

Использование гамма-спектрометров с высоким энергетическим разрешением и большой светосилой позволяет существенно повысить информативность и эффективность применения гамма-спектрометрических методов в научных исследованиях и прикладных областях. В настоящее время в основном используются гамма-спектрометры на основе сверхчистого германия (HPGe), обеспечивающие высокое энергетическое разрешение 0.2% для гамма-линии 662 keV, и сцинтилляционные кристаллы NaI с энергетическим разрешением 7% для гамма-линии 662 keV, позволяющие достичь высокой эффективности регистрации гамма-излучения. Однако имеющиеся у этих детекторов недостатки (необходимость применения криогенной техники для германиевых гамма-спектрометров и низкое энергетическое разрешение для аппаратуры на основе NaI) в ряде случаев ограничивают их применение. Новое поколение полупроводниковых и сцинтилляционных гамма-спектрометров на основе кристаллов CdZnTe, LaC₁₃:Ce, LaBr₃:Ce, и др. также не лишено недостатков: невысокая светосила (небольшие размеры), низкая температурная стабильность, собственная радиоактивность, высокая стоимость и т.д. По этой причине особенно актуальна разработка более совершенных гамма-спектрометров. В МИФИ на протяжении ряда лет ведется разработка гамма-спектрометров с высоким энергетическим разрешением на основе сжатого ксенона, которые обладают рядом преимуществ по сравнению с применяемыми в настоящее время детекторами. Это позволяет успешно использовать их для решения задач как прикладного, так и фундаментального характера.

Необходимым начальным этапом обращения с радиоактивными отходами является их сортировка, которая должна обеспечить получение данных по интенсивности излучения и составу доминирующих радиоизотопов. С учетом условий различных производств (предприятия ЯТЦ, АЭС, ЯОК, производство радиоактивных изотопов) для решения указанной задачи целесообразно использовать гамма-спектрометры с высоким энергетическим разрешением, способные работать в широком диапазоне температур в условиях интенсивных полей ионизирующих излучений, обладающие большим эксплуатационным ресурсом, коротким временем измерения и, по возможности, не требующие специальных систем охлаждения, усложняющих и удорожающих их эксплуатацию.

Несмотря на то, что существует множество радиоактивных продуктов деления, большинство этих изотопов распадаются достаточно быстро. Основными долгоживущими радионуклидами являются ¹³⁷Cs, ⁶⁰Co, ¹³³Ba, ¹⁵²Eu и др. Безусловно, подобные элементы могут находиться в виде радиоактивных отходов, утечек или выбросов после аварий ядерно-физических установок под развалинами слоев конструкций или земли.

Появляется необходимость точного определения типа радионуклида и его глубины залегания. Для решения этой задачи можно использовать теллурид кадмиевый (CdTe) полупроводниковый гамма-детектор. Данный тип полупроводникового гамма-детектора позволяет регистрировать как гамма-кванты, так и рентгеновское излучение по отношению темпов счетов которых можно определить глубину залегания радиоактивных источников, излучающих в двух диапазонах энергии [1]:

$$d = \frac{1}{\mu_X - \mu_Y} \log_e \frac{(N_{0X}/N_{0Y})}{(N_X/N_Y)}, \quad (1)$$

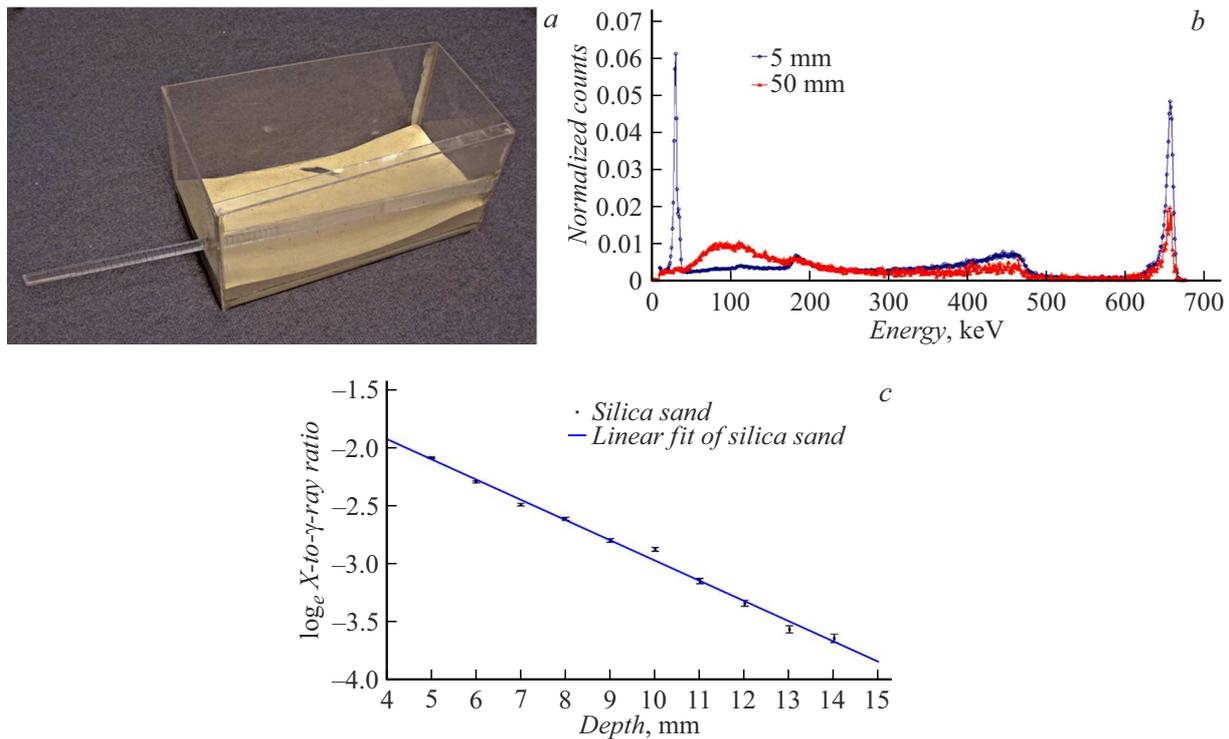


Рис. 1. *a* — фотография фантома, наполненного песком (кремния), где располагался радиоизотоп ¹³⁷Cs, *b* — два спектра для закрытого точечного источника ¹³⁷Cs, помещенного на глубину 5 и 50 mm в кварцевый песок, *c* — график зависимости log_eN₀/N_{X/γ} от глубины *d* для точечного источника, погруженного в сухой кварцевый песок.

где μ_X и μ_γ — коэффициенты поглощения рентгеновского и гамма-излучения, N_{0X} и $N_{0\gamma}$ — темпы счета рентгеновских и гамма-фотопиков на нулевой глубине, N_X и N_γ — темпы счета на исследуемой глубине d залегания источника.

С помощью гамма-детектора на основе полупроводника CdTe был измерен спектр изотопа ¹³⁷Cs, который был расположен в кварцевом песке (рис. 1). По результатам измерений была получена зависимость отношения темпов счета $\log_e N_0/N_{X/\gamma}$ от глубины залегания d (рис. 1, *c*).

Рентгеновский фотопик, наблюдаемый на глубине 5 mm, отсутствует на глубине 50 mm, тогда как пик от гамма-квант с энергией 662 keV присутствует на обеих глубинах, но значительно ослаблен на глубине 50 mm по сравнению с глубиной 5 mm примерно на 50%.

Оценки неопределенности, связанные с определением глубины залегания источника на основе этих калибровочных данных, показывают, что оценки глубины могут быть сделаны с точностью до ± 1 mm. Недостатком данного исследования является уменьшение амплитуды рентгеновского фотопика при увеличении толщины поглотителя, что приводит к неприменимости этого метода при больших толщинах.

Исследование подобного рода также были выполнены с HPGe [2]. В данном эксперименте в качестве поглотителя использовались несколько слоев бетонных плиток, источником гамма-квантов являлся ¹⁵²Eu (рис. 2).

С целью определения глубины залегания источника использовался также метод отношения площади пика полного поглощения к площади комптоновской долины, который сравнивает темп счета пика полного поглощения, измеренного портативным HPGe, и темп счета комптоновской долины. Применяя результаты этого исследования, можно оценить глубину залегания источника гамма-излучения с относительной погрешностью порядка 20%. Недостатками этого исследования является дороговизна детектора на основе кристалла HPGe и необходимость его охлаждения во время эксплуатации.

1. Экспериментальная установка

Составной частью ксенонового гамма-спектрометра (КГС) является ксеноновый гамма-детектор (КГД) на основе наполненной смесью сжатого ксенона с водородом цилиндрической ионизационной камеры с экранирующей сеткой, работающей в импульсном режиме [3–6]. Рабочий объем гамма-детектора равен 2000 см³ при торцевой площади, равной 430 см². Отношение рабочего объема ионизационной камеры к общему объему детектора равно примерно 85%. Общий вид КГД представлен на рис. 3.

Физико-технические характеристики ксенонового гамма-детектора представлены в табл. 1.

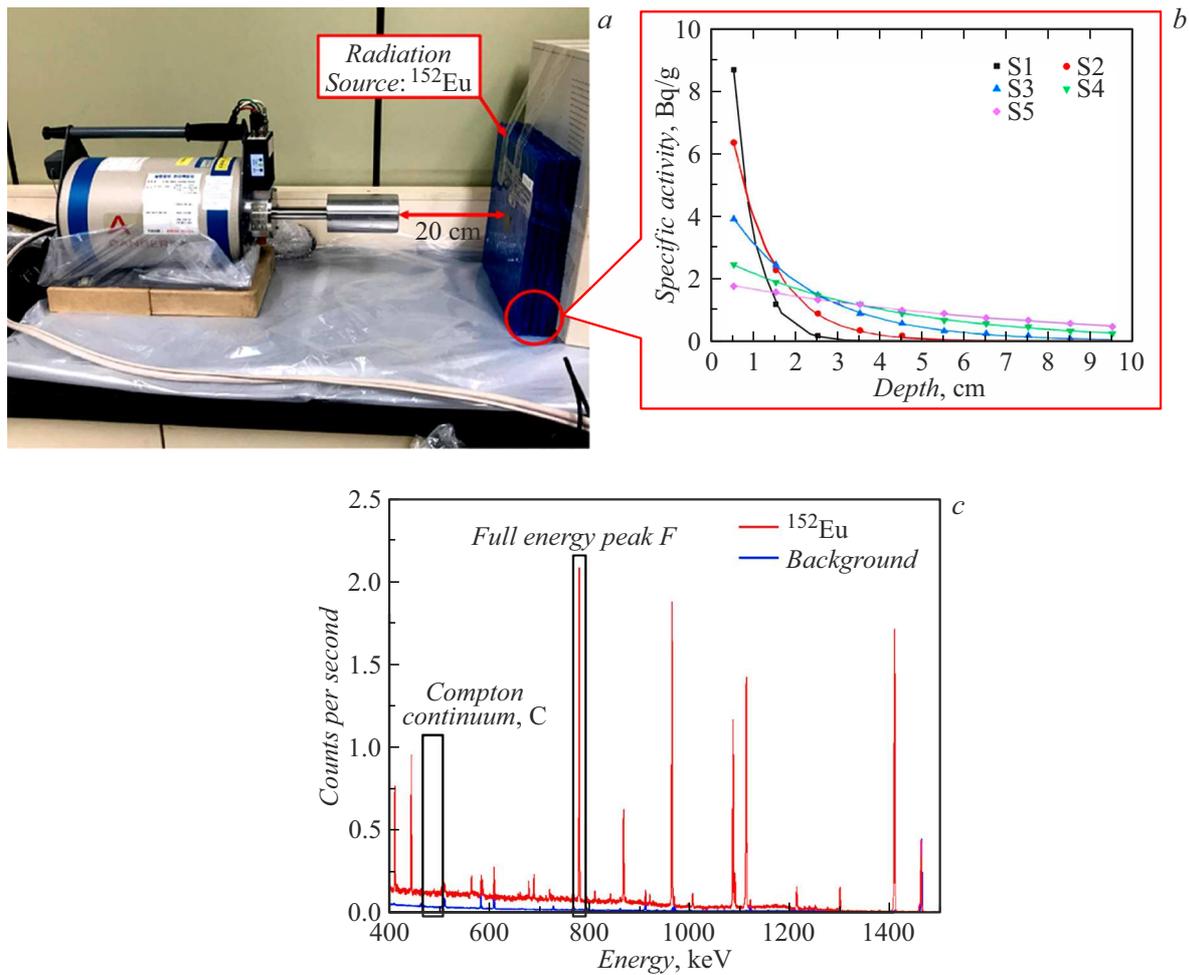


Рис. 2. *a* — гамма-спектрометр HPGe и бетонные плиты, *b* — график зависимостей удельных активностей от толщин поглотителей для наборов бетонных плиток S1-5, *c* — гамма-спектр, полученный от радионуклида ^{152}Eu с помощью гамма-спектрометра HPGe.

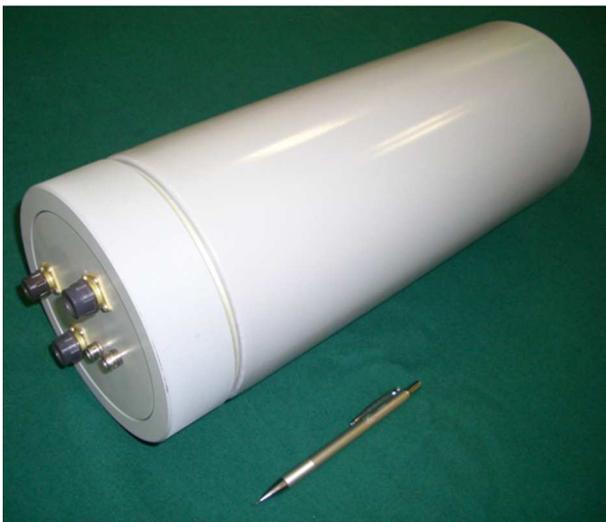


Рис. 3. КГД в герметичном корпусе.

Для изучения спектрометрических характеристик КГС были набраны спектры от источников фотонного излучения типа ОСГИ (образцовые спектрометрические источники гамма-излучения) с активностью не более 100 кВк. При измерении спектров гамма-источники располагались с торца КГД на расстоянии 20 см. Для обработки электрических импульсов с КГД и накопления энергетических спектров регистрируемого гамма-излучения использовался блок цифровой электроники, разработанный в НИЯУ МИФИ. Для анализа работы КГС и обработки данных в режиме реального времени использовался персональный компьютер с установленным специализированным программным обеспечением, разработанным также в НИЯУ МИФИ.

В качестве примера на рис. 4 приведены характерные спектры от гамма-источников ^{137}Cs , ^{133}Ba , ^{60}Co и ^{152}Eu , измеренные ксеноновым гамма-спектрометром.

Для определения минимально детектируемой активности (МДА) КГС были проведены измерения спектров от гамма-источников типа ОСГИ, находящихся с торца

Таблица 1. Основные физико-технические характеристики КГД

Наименование параметра и единицы измерения	Значение
Плотность ксенона, g/cm ³	0.3–0.4
Давление ксенона при 23°С, atm	42
Диапазон измеряемых энергий гамма-квантов, MeV	0.04–3
Энергетическое разрешение для энергии гамма-квантов 662 keV, %	1.9 ± 0.3
Эффективность регистрации гамма-квантов с энергией 662 keV, %	2
Линейность энергетической шкалы, %	< 1
Чувствительный объем, см ³	2000
Напряжение на сетке детектора, kV	13
Напряжение на катоде детектора, kV	21
Диаметр анода, mm	20
Диаметр сетки, mm	40
Диаметр катода, mm	117
Толщина стенки детектора, mm	3
Масса, kg	5
Габариты, cm	Ø15 × 45
Энергопотребление, W	не более 25
Напряжение питания, V	~ 220 или +27
Диапазон рабочих температур (без системы терморегулирования), °С	от 0 до +90
Рабочий ресурс, years	не менее 10
Радиационная стойкость, возможность работать при потоках нейтронов, neutron/c · cm ²	40

детектора на расстоянии 26 cm от центра КГС в течение 1000 s. Результаты измерений представлены в табл. 2.

2. Метод измерений

Ранее с помощью КГС была исследована глубина залегания источника гамма-квантов ¹³⁷Cs для различных толщин грунта (почвы) [7], где методика эксперимента основывалась на изменении пика полного поглощения и комптоновской долины в полученных гамма-спектрах.

Для исследования поглощения гамма-квантов в керамической плитке были проведены измерения КГС спектров от различных гамма-источников. Химический состав керамической плитки был определен с помощью рентгенофлуоресцентного спектрометра (табл. 3) [8].

Данные химического состава керамики были введены в программу XMuDat [9], которая позволила получить значение коэффициента поглощения для данной керамики.

3. Экспериментальные результаты

Были проведены экспериментальные исследования, где от одной до двенадцати керамических плиток размером 20 × 15 × 0.65 cm располагались перед торцом КГС. Использовались гамма-источники типа ОСГИ (⁶⁰Co, ¹³⁷Cs, ¹³³Ba и ¹⁵²Eu), которые располагались перед керамическими плитками (рис. 5).

На рис. 6 приведены энергетические спектры гамма-источников ⁶⁰Co, ¹³⁷Cs, ¹³³Ba и ¹⁵²Eu, измеренные КГС, при наличии керамических плиток, где спектр фонового гамма-излучения был вычтен.

С увеличением количества керамических плиток отчетливо наблюдается относительное увеличение площади комптоновской долины, которая выбиралась в диапазоне энергий гамма-квантов для источника ⁶⁰Co от 1200 до 1280 keV, ¹³⁷Cs от 500 до 600 keV, ¹³³Ba от 310 до 335 keV и ¹⁵²Eu от 255 до 325 keV. Для источника ¹³⁷Cs диапазон, выбранный для комптоновской долины, располагается между пиком полного поглощения и правым краем комптоновского распределения с учетом уширения пиков и размытия границ. Для ⁶⁰Co,

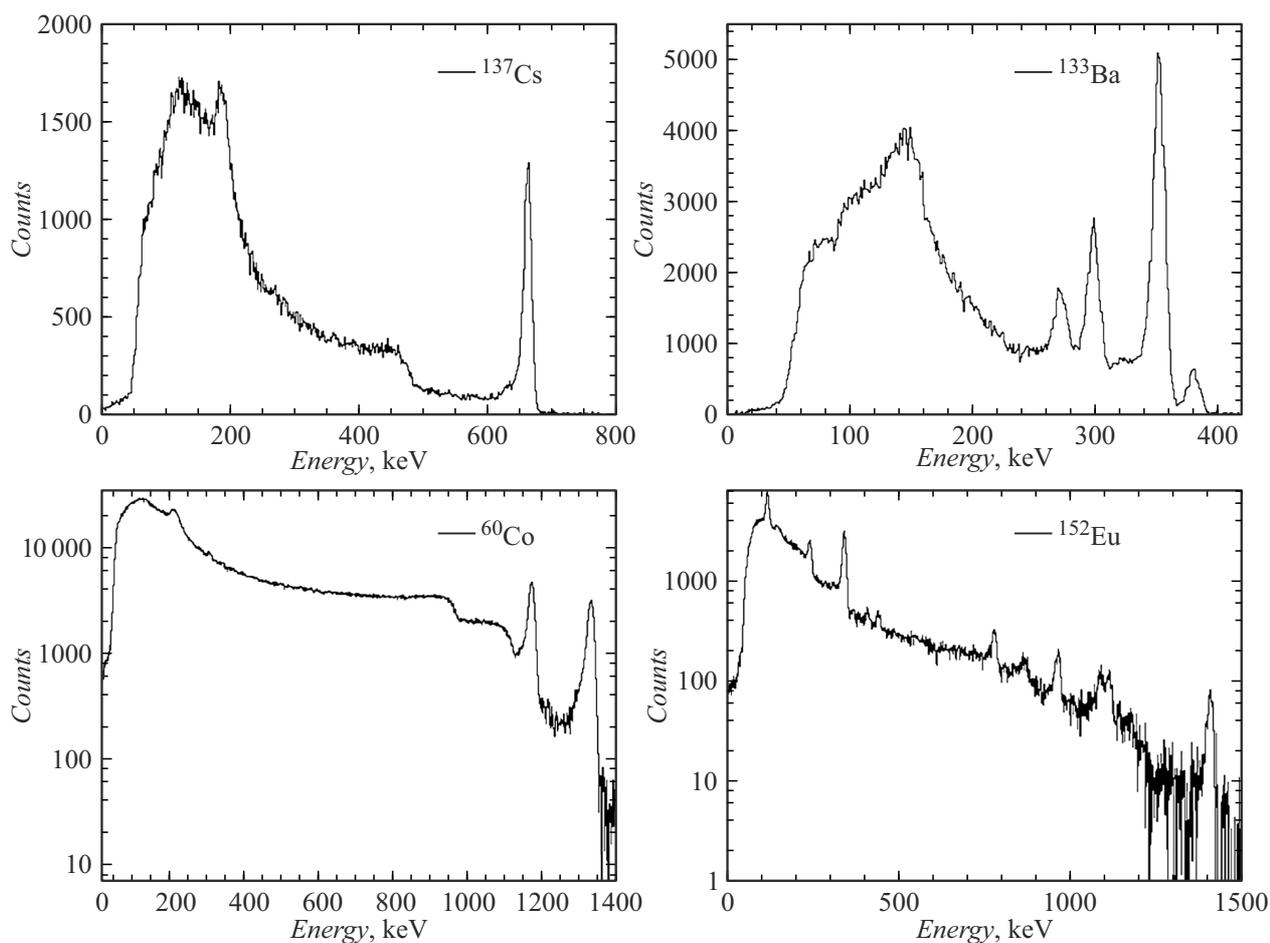


Рис. 4. Спектры от источников ^{137}Cs , ^{133}Ba , ^{60}Co и ^{152}Eu , полученные при измерении с торца КГД.

Таблица 2. Минимальная детектируемая активность КГС

Изотоп	Энергия гамма-квантов, keV	МДА, kBq
^{137}Cs	662	0.26
^{60}Co	1174	1.1
^{60}Co	1332	0.5
^{133}Ba	276	1.13
^{133}Ba	302	1
^{133}Ba	356	0.51
^{133}Ba	386	5.2
^{152}Eu	122	1.89
^{152}Eu	244	4.07
^{152}Eu	344	0.71
^{152}Eu	779	2.46
^{152}Eu	964	5.18
^{152}Eu	1408	2.5

Таблица 3. Химический состав керамической плитки

Компоненты	Относительная масса
Диоксид кремния	0.6639
Оксид кальция	0.0364
Оксид алюминия	0.1814
Оксид железа	0.0379
Оксид магния	0.036
Оксид калия	0.0339

^{133}Ba и ^{152}Eu диапазон выбирался аналогичный тому, что взяли авторы статьи [2], где нет пиков полного поглощения.

В результате обработки экспериментальных данных были получены коэффициенты поглощения керамики в зависимости от энергии гамма-квантов (рис. 7).

По результатам эксперимента (рис. 7) был определен коэффициент поглощения керамической плитки, который совпадает в пределах погрешностей с таблич-

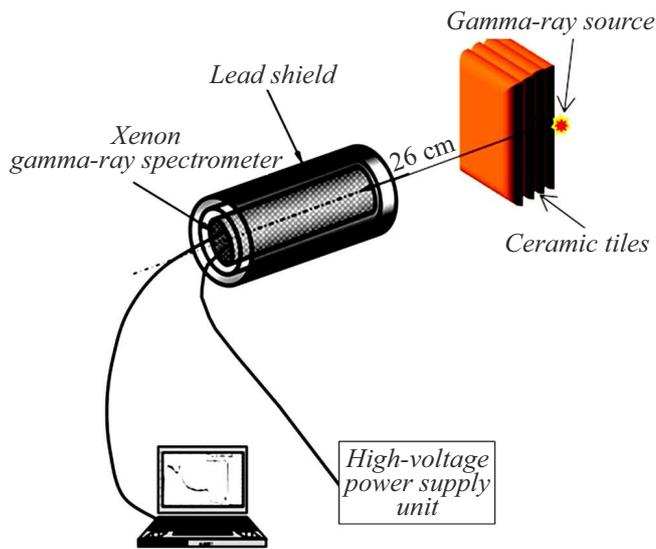


Рис. 5. Геометрия эксперимента.

ными значениями, полученный с помощью программы XMuDat (табл. 4).

Для каждого спектра были вычислены темпы счета площадей пиков полного поглощения и комптоновской долины различных гамма-источников (рис. 8).

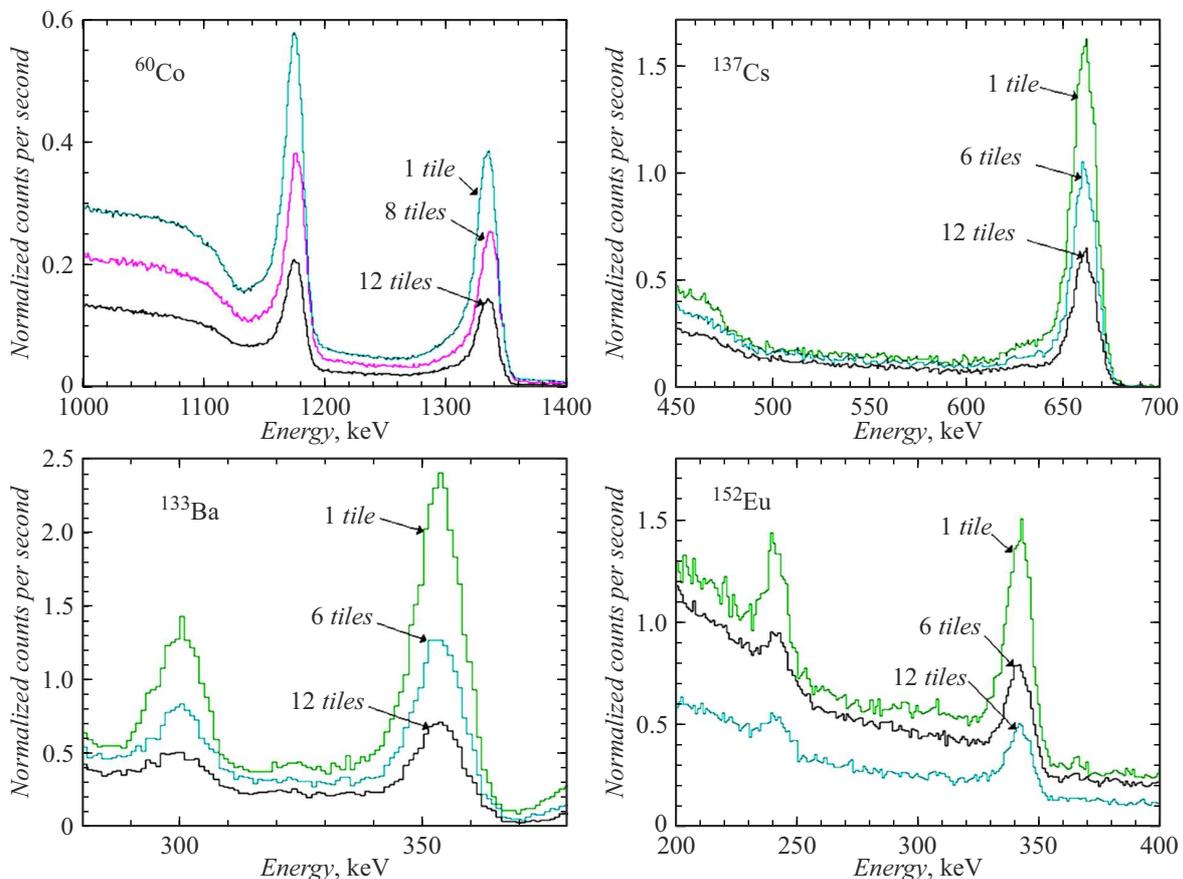


Рис. 6. Спектры от источника ^{60}Co , ^{137}Cs , ^{133}Ba и ^{152}Eu с поглотителями (керамика) различной толщины.

Были определены отношения темпов счета площадей пиков полного поглощения и комптоновской долины (S_{Peak}/S_{valley}) в зависимости от толщины керамических плиток (рис. 9). Площадь комптоновской долины вычислялась в вышеуказанных диапазонах, а пики полного поглощения в результате аппроксимации распределением Гаусса.

Для аппроксимации точек в графиках на рис. 9 была использована функция:

$$y = \Delta e^{-xt}, \quad (2)$$

где Δ — константа, определяющая отношение темпов счета площади пика полного поглощения и темпов счета площади комптоновской долины для нулевой толщины поглотителя, t — коэффициент ослабления потоков гамма-квантов, которые составляют спектр в области пика полного поглощения и комптоновской долины, x — толщина поглотителя.

Погрешности S_{Peak}/S_{valley} вычислялись по формуле

$$E_{err} = \sqrt{(S_{Peak}^{err}/S_{valley})^2 + (S_{Peak}S_{valley}^{err}/(S_{valley})^2)^2}, \quad (3)$$

где S_{Peak}^{err} и S_{valley}^{err} — погрешности площади пика полного поглощения и площади комптоновской долины, S_{Peak} и S_{valley} — площади пика полного поглощения и комптоновской долины.

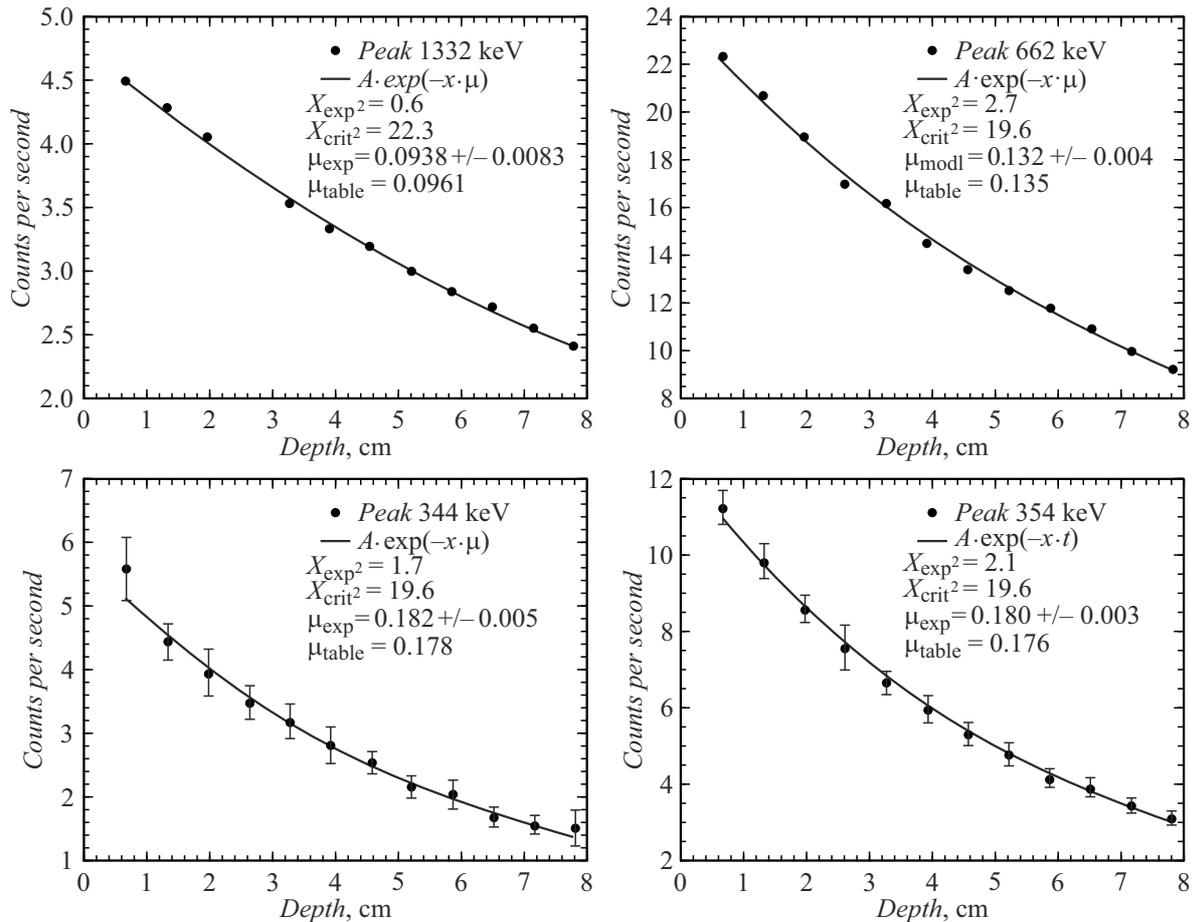


Рис. 7. Графики зависимости темпа счета площади пика полного поглощения от толщины поглотителя (керамика) для различных источников гамма-квантов — ^{60}Co , ^{137}Cs , ^{133}Ba , ^{152}Eu . χ_{exp}^2 и χ_{crit}^2 — экспериментальное и критическое значение критерия Пирсона, μ_{exp} и μ_{table} — экспериментальные и табличные значения коэффициента поглощения.

Таблица 4. Коэффициенты поглощения керамических плиток для разных энергий гамма-линий

Гамма-источник	Энергия, keV	Табличные значение коэффициента поглощения керамики, cm^{-1}	Экспериментальные значения коэффициента поглощения керамики, cm^{-1}
^{60}Co	1332	0.0961	0.094 ± 0.008
^{137}Cs	662	0.1350	0.135 ± 0.004
^{133}Ba	354	0.1760	0.180 ± 0.003
^{152}Eu	344	0.1780	0.182 ± 0.005

На рис. 10 представлены графики отношения темпа счета площади пика полного поглощения для энергии гамма-квантов 662 keV к темпу счета площади комптоновской долины от толщины различных поглотителей (керамика, алюминий, почва, вода), полученных в результате проведения экспериментов.

Для расчета погрешности глубины x источника используется формула (2) и ее дифференциал:

$$dy = -\Delta t e^{-xi} dx,$$

$$dx = -\frac{dy}{\Delta t} e^{xi}. \tag{4}$$

Погрешность глубины dx зависит не только от статистической погрешности dy отношения пик–долина, но и от самого значения величины x . Из-за особенностей зависимости (2) наклон касательной к экспоненте при больших глубинах x будет стремиться к нулю, что приводит к росту погрешности. В качестве альтернативы можно воспользоваться модифицированной методикой для определения глубины из статьи [10], в которой авторы после некоторых преобразований получают линейную зависимость обратного нормированного отношения пик–долина от толщины поглотителя x . В результате

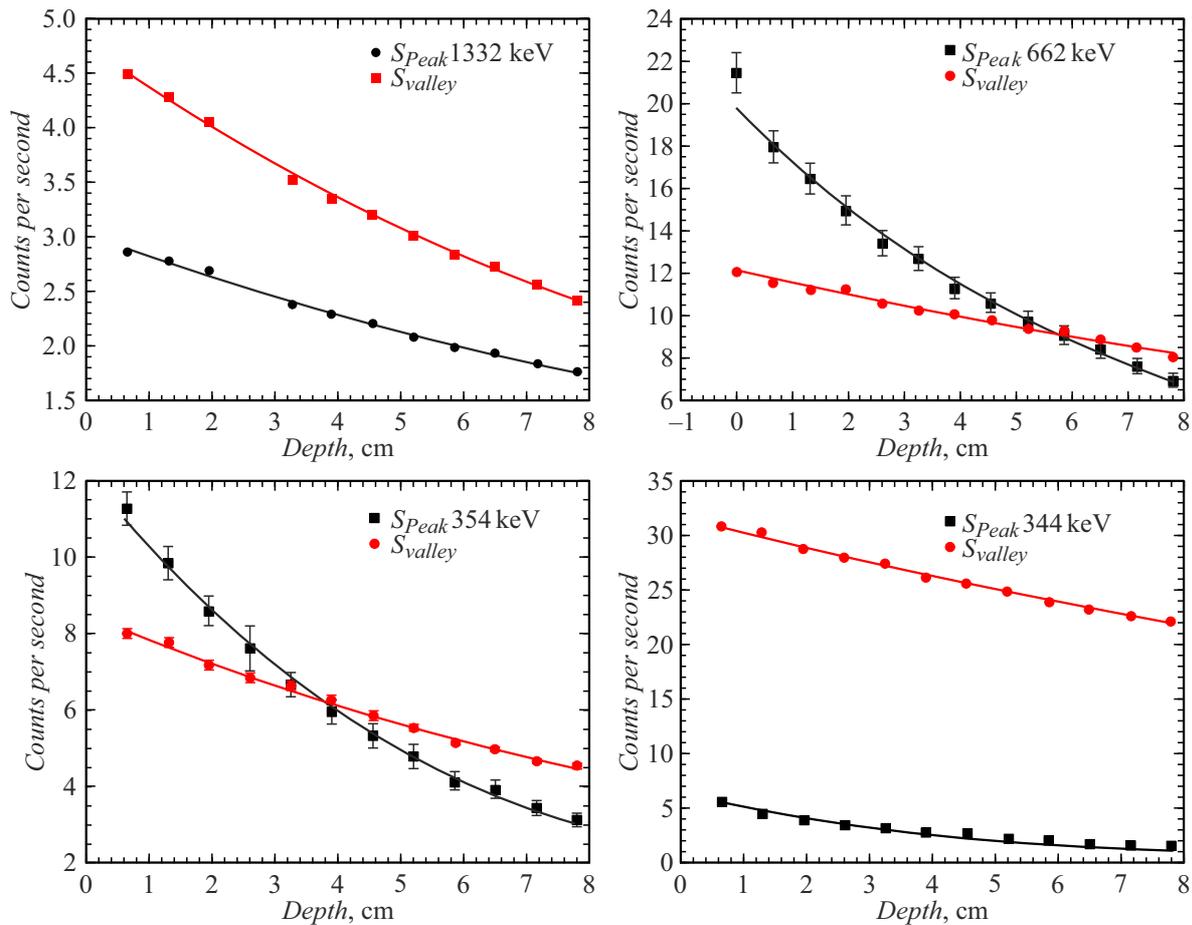


Рис. 8. Зависимость площадей комптоновской долины S_{valley} ^{60}Co , ^{137}Cs , ^{152}Eu , ^{133}Ba и пика полного поглощения S_{Peak} от толщины керамики.

погрешность вычисляется по более простой формуле:

$$dx = \frac{dy}{A}, \tag{5}$$

где A — константа линейной зависимости $y = Ax + B$, y — отношения экспериментального значения пик–долина при глубине $x = 0$ к текущему значению пик–долина на глубине x (рис. 11).

В табл. 5 представлены результаты расчетов погрешности глубины залегания радиоактивного источника ^{137}Cs активностью 100 kBq за время измерения 60 min для различных материалов.

Также были сравнены экспериментальные результаты и результаты моделирования методом Монте-Карло с использованием пакета библиотек Geant4 [11] с учетом конструктивных характеристик КГС, соответствующих реальной измерительной установке. В моделировании использовались гамма-кванты с энергией 662 keV. По полученным результатам моделирования был построен график зависимости отношения площади пика полного поглощения к площади комптоновской долины (рис. 12).

На рис. 12 видно, что экспериментальные результаты и результаты, полученные с использованием метода

Монте-Карло в Geant4, совпадают в пределах погрешностей.

Заключение

По результатам экспериментов с КГС с рабочим объемом 2000 см³ и гамма-источниками ^{137}Cs , ^{60}Co , ^{133}Ba , ^{152}Eu , располагавшимися за различными поглотителями, удалось продемонстрировать, что представленная методика с использованием отношения темпа счета площади пика полного поглощения и площади комптоновской долины позволяет определять активность, радионуклидный состав и глубину залегания радионуклидов. Погрешность значения глубины источника ^{137}Cs для керамики составляет 0.32 см при глубине 7.8 см, алюминия 0.58 см при глубине 5.3 см, почвы 0.35 см при глубине 20 см и воды 0.33 см при глубине 12 см. Данную методику можно применять при эксплуатации и выводе из эксплуатации атомных объектов, при проведении радиоэкологической разведки окружающей среды и оценке последствий атомных техногенных катастроф.

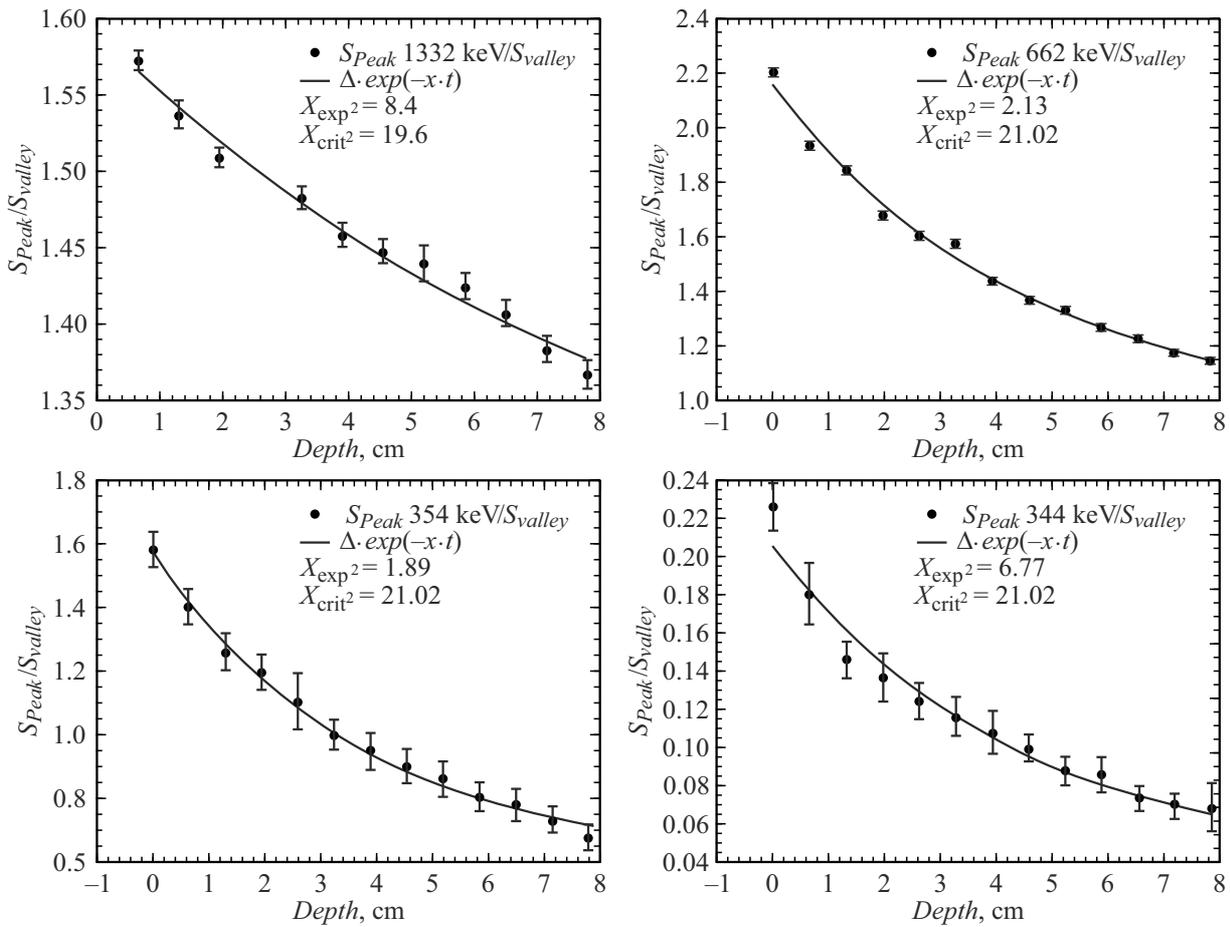


Рис. 9. Зависимость отношения площади пика полного поглощения и комптоновской долины S_{Peak}/S_{valley} от толщины слоя керамики для различных источников гамма-излучения ^{60}Co , ^{137}Cs , ^{133}Ba , ^{152}Eu .

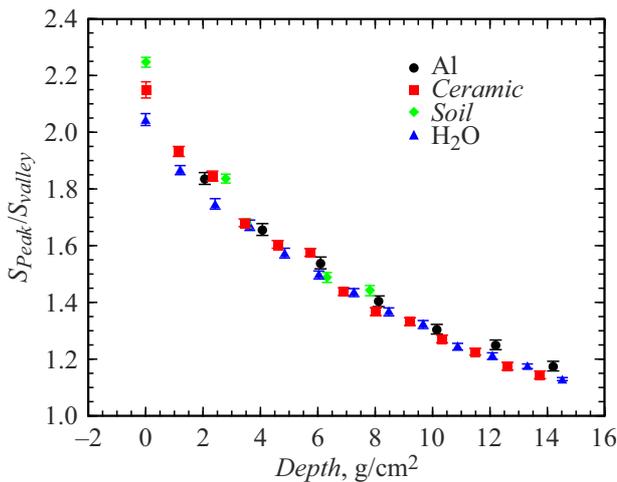


Рис. 10. Графики экспериментальных зависимостей отношения темпа счета площади пика полного поглощения для энергии гамма-квантов 662 keV к темпу счета площади комптоновской долины от толщины поглотителя для различных материалов (керамика, алюминий, почва, вода).

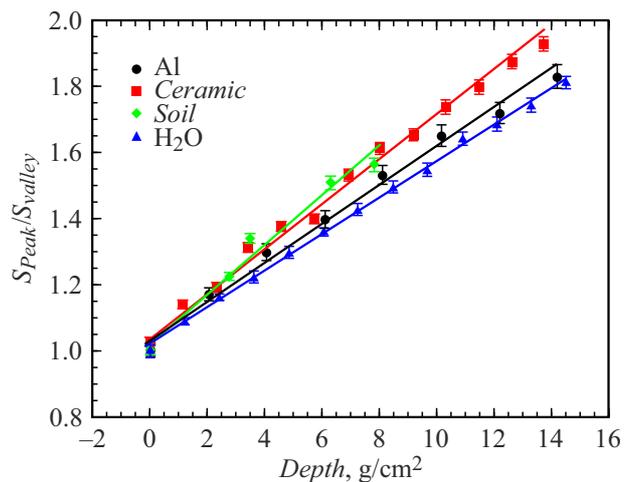
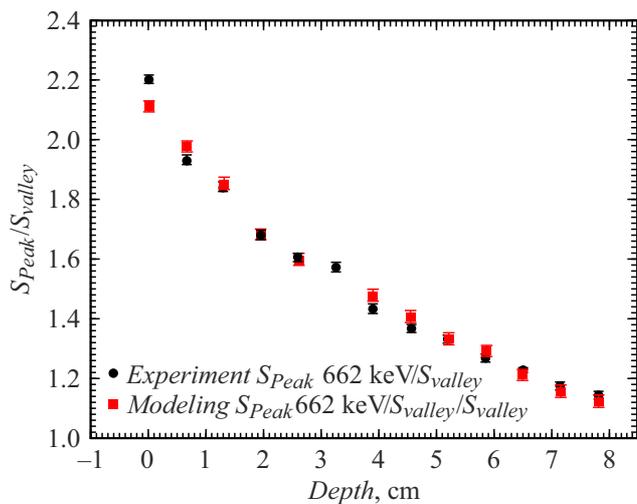


Рис. 11. Графики экспериментальных зависимостей обратного нормированного отношения пик–долина для энергии гамма-квантов 662 keV от толщины поглотителя для различных материалов (керамика, алюминий, почва, вода).

Таблица 5. Погрешности глубины залегания источника ^{137}Cs в различных материалах

Материал	Глубина, см	Погрешность глубины, см	Относительная погрешность, %
Алюминий (Al)	5.3	0.58	10
Керамика	7.8	0.32	4.2
Почва	20.0	0.35	1.8
Вода (H ₂ O)	12.0	0.33	2.7

**Рис. 12.** График зависимости отношения темпа счета площади пика полного поглощения для энергии гамма-квантов 662 keV к темпу счета площади комптоновской долины от толщины поглотителя (керамика).

Финансирование работы

Работа выполнена при поддержке Программы стратегического академического лидерства „Приоритет-2030“.

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

- [1] M.J. Joycecatl. *Finding the depth of radioactivity in construction materials*. Proceed. Institution of Civil Engineers: Energy, **2** (166), 67 (2018). DOI: 10.1680/ener.12.00003
- [2] B. Lee, Y. Kim, W. L'yi, J. Kim, B. Seo, S. Hong. *Appl. Radiation and Isotopes*, **169** (3), 109558 (2021). DOI: 10.1016/j.apradiso.2020.109558
- [3] A.S. Novikov, S.E. Ulin, V.V. Dmitrenko, Z.M. Uteshev, K.F. Vlasik, V.M. Grachev, Y.V. Efremenko, I.V. Chernysheva, A.E. Shustov. *Opt. Eng.*, **53** (2), 021108 (2013). DOI: 10.1117/1.OE.53.2.021108

- [4] I.A. Yujakov, A.I. Madzhidov, V.V. Dmitrenko, S.E. Ulin, K.F. Vlasik, V.M. Grachev, R.R. Egorov, K.V. Krivova, Z.M. Uteshev, I.V. Chernysheva, A.E. Shustov. *Phys. Part. Nuclei Lett.*, **21**, 739 (2024). DOI: 10.1134/S154747712470122X
- [5] A.I. Madzhidov, V.V. Dmitrenko S.E. Ulin, V.M. Grachev, K.F. Vlasik, R.R. Egorov, M.G. Korotkov, K.V. Krivova, Z.M. Uteshev, I.V. Chernysheva, A.E. Shustov. *J. Phys.: Conf. Ser.*, **2642**, 012011 (2023). DOI: 10.1088/1742-6596/2642/1/012011
- [6] I.F. Khimmatov, S.E. Ulin. *Phys. Atom. Nuclei*, **87**, 620 (2024). DOI: 10.1134/S1063778824700601
- [7] А.И. Маджидов, В.В. Дмитриенко, С.Е. Улин, В.М. Грачев, Д.Н. Власов, Р.Р. Егоров, К.В. Кривова, З.М. Утешев, А.Е. Шустов. *Радиоактивные отходы*, **1** (26), 26 (2024). DOI: 10.25283/258-9707-2024-1-26-34
- [8] O. Morris, C. Kanali, Z.C.A. Gariy, E. Ronoh. *Intern. J. IT, Engineer. Appl. Sci. Res. (IJEASR)*, **7** (7), 1 (2018).
- [9] *International Atomic Energy Agency Vienna (Austria)* N.D.S. XMuDat: Photon attenuation data on PC Version 1.0.1 of August 1998 Summary documentation 1998. C. 2.
- [10] Vu Ngoc Ba, Truong Thi Hong Loan, Ngo Quang Huy. *J. Radioanalytical Nuclear Chem.*, **317** (3), 1455 (2018). DOI: 317.10.1007/s10967-018-6035-6
- [11] GEANT4 TOOLKIT Электронный ресурс: *Пакет моделирования взаимодействия частиц с веществом*. Режим доступа: <http://geant4.cern.ch>