Особенности использования детекторов различного типа для решения практических задач гамма-спектрометрического анализа на этапе обработки информации

В.Н.Даниленко *ООО «ЛСРМ», Россия п. Менделеево Московской обл.*

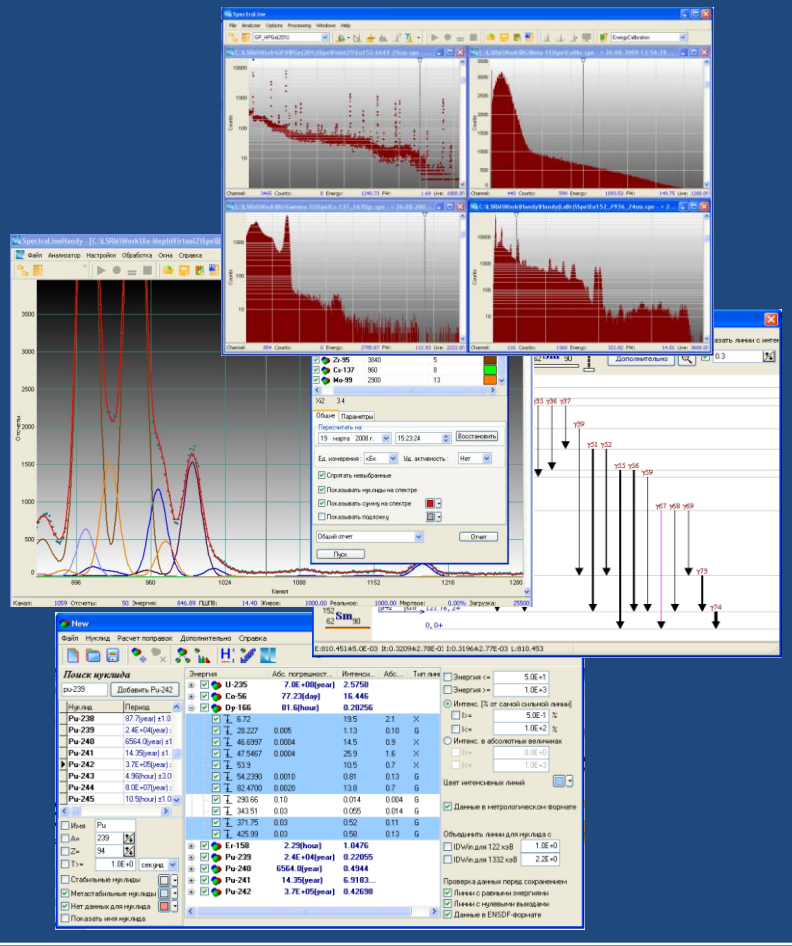
LABORATORY
of spectrometry
and radiometry

http://www.lsrm.ru
mail: lsrm@lsrm.ru
Phone: +7 495 660-16-14
Located in Moscow, Russia

LABORATORY
of spectrometry
and radiometry

Программное, методическое и метрологическое обеспечение измерений ионизирующих излучений

- **Программные комплексы для полупроводниковых и сцинтилляционных спектрометров α-, β-, γ-излучения:**
  — сертификационные измерения
  — обнаружение и идентификация делящихся и радиоактивных материалов
  — радиационный мониторинг
- **Оригинальные методики выполнения измерений**
- **Базы данных по параметрам радиоактивного распада**
- **Оригинальные алгоритмы и методы расчёта характеристик ионизирующих излучений**



Задачи гамма-спектрометрического анализа

Целевая классификация

- Аттестация образцовых источников гамма-излучения (активность или количество гамма-квантов)
- Прецизионные измерения параметров радиоактивного распада, прежде всего энергии и интенсивности гамма-излучения
- Сертификационные измерения с точки зрения безопасности использования на этапе потребления
- Паспортизация РАО
- Контроль над перемещением ядерных и радиоактивных материалов (как легальным, так и нелегальным)
- Контроль технологических процессов при производстве ядерных и радиоактивных материалов, на АЭС при контроле
- Мониторинг: состояние окружающей среды, атмосферы, почвы
- Гамма-каротаж

Задачи гамма-спектрометрического анализа

- **Аппаратура: детектор+анализатор**
- **Калибровочные образцы, процедуры**
- **Методики измерения и программное обеспечение**

Детекторы

DETECTOR	BGO ($Bi_4Ge_3O_{12}$)	NaI:Tl (compact)	$LaCl_3$:Ce (La:Ce::10:1)	$LaBr_3$:Ce (La:Ce::200:1)	Xe ($Xe:H_2$::200:1)	(CPG) CdZnTe (Cd:Zn:Te::1-x:x<0.1:1	CdTe (elect. cooled)	Ge (thick planar) (elect. or LN_2 cooled)
TYPE	scintillator	scintillator	scintillator	scintillator	gas (ioniz. chamber)	solid-state	solid-state	solid-state
DIMENSIONS: area (cm^2) × thick. (cm)	5 cm^2 x 2.5 cm (or larger)	5 cm^2 x 5 cm (or much larger)	5 cm^2 × 5 cm (currently up to 20 cm^2 × 5 cm)	5 cm^2 × 4 cm (currently up to 20 cm^2 × 5 cm)	11 cm^2 × 7.5 cm (up to 100 cm^2 × 75 cm)	2.3 cm^2 × 1.5 cm (largest*)	1.2 cm^2 × 0.3 cm (largest*)	5 cm^2 x 1.5 cm (or much larger)
VOLUME (cm^3)	13 (or larger)	26 (or much larger)	26 (currently up to 100)	20 (currently up to 100)	83 (up to 7500)	3.5 (largest*)	0.4 (largest*)	8
AVERAGE Z	28	32	28	41	54	49	49	32
DENSITY (g/cm^3)	7.1	3.7	3.9 (van Loef 01)	5.3 (van Loef 01)	0.4-0.5 (Knoll 00 716)	6.0	6.1	5.3
RESOLUTION: % FWHM @ 662 keV [Intrinsic Photoel. Eff., %][b]	12% (Romano 99) [2.80]	7% (Vo 02a) [1.000]	3.3% (van Loef 01) Commercial spec <4% [0.81]	2.8% (van Loef 01) Commercial spec <3% [0.40]	2% (Bedding 03a) Commercial spec <4% [0.20]	3.2% (Vo 02a)** [0.47]	0.6 % (Vo 02a) [0.10]	0.2% Vo 02a [0.10]
RESOLUTION: % FWHM @ 122 keV [Intrinsic Photoel. Eff., %][b]	28% (Romano 99) [1.00]	13% (Vo 02a) [1.000]	*Better than NaI* Commercial spec ~8%. [1.00]	*Better than NaI* Commercial spec ~7% [1.00]	7% (Bedding 03a) [0.95]	6.3% (Vo 02a) [1.00]	1.5 % (Vo 02a) [0.78]	0.4% Vo 02a [0.81]
PHOTON PEAK λ (ηm)[c]	480	415	330 (van Loef 01)	360 (van Loef 01)	NA	NA	NA	NA
PHOTON DECAY τ (ηs)	300	230	25 (60%) 210 (30%)	35 (90%)	NA	NA	NA	NA
AVAILABILITY	~ 6 wks after order	~ 2 wks after order	~ 4 wks after order	4-8 wks after order	?	~ 1 yr after order	~ 24 wks after order	~ 4-8 wks after order

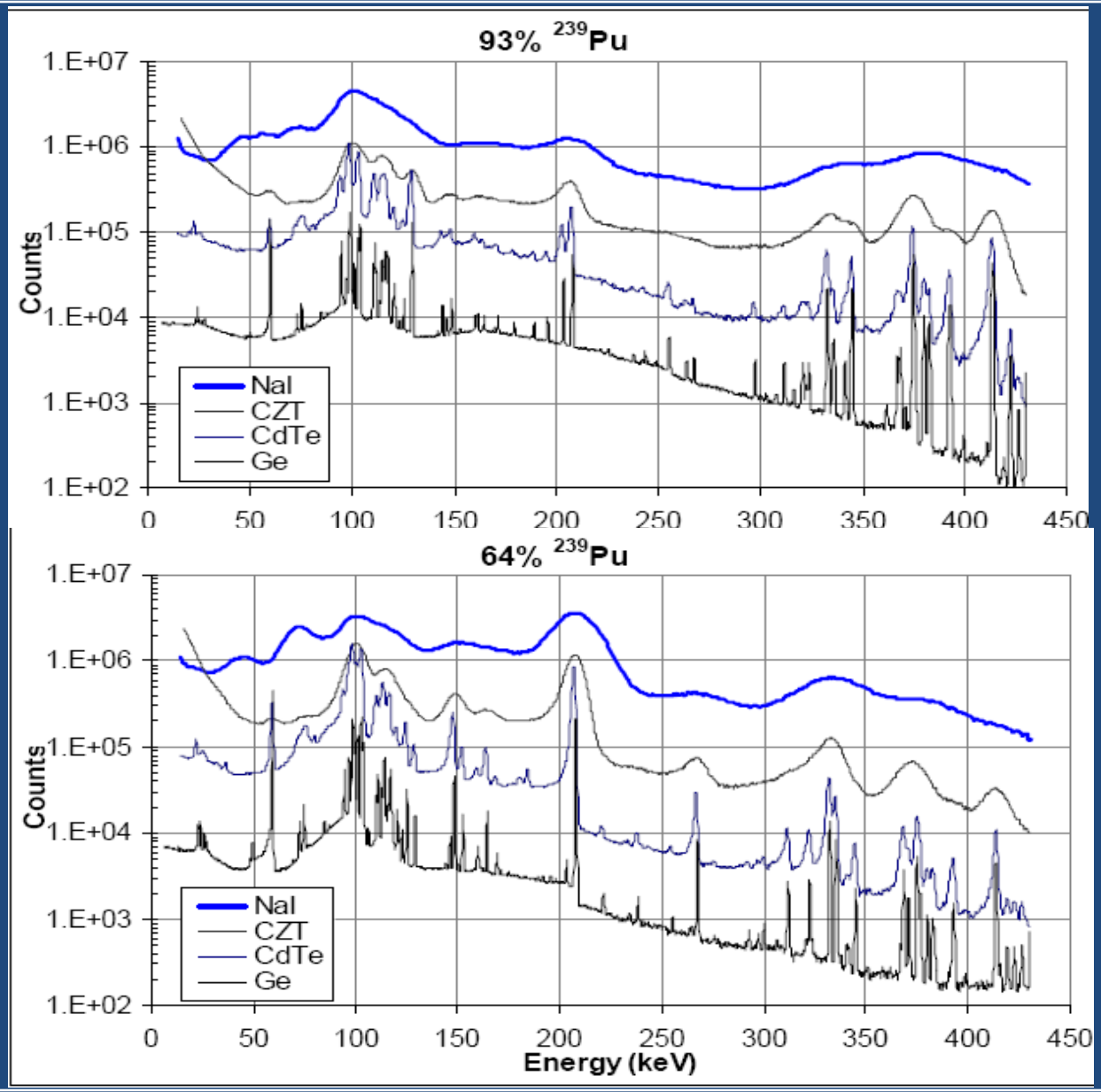
http://www.lanl.gov/orgs/n/n1/panda/1.%20Gamma-ray%20Detectors%20LAUR.pdf

GAMMA-RAY DETECTORS FOR NONDESTRUCTIVE ANALYSIS
P. A. Russo and D. T. Vo

Детекторы

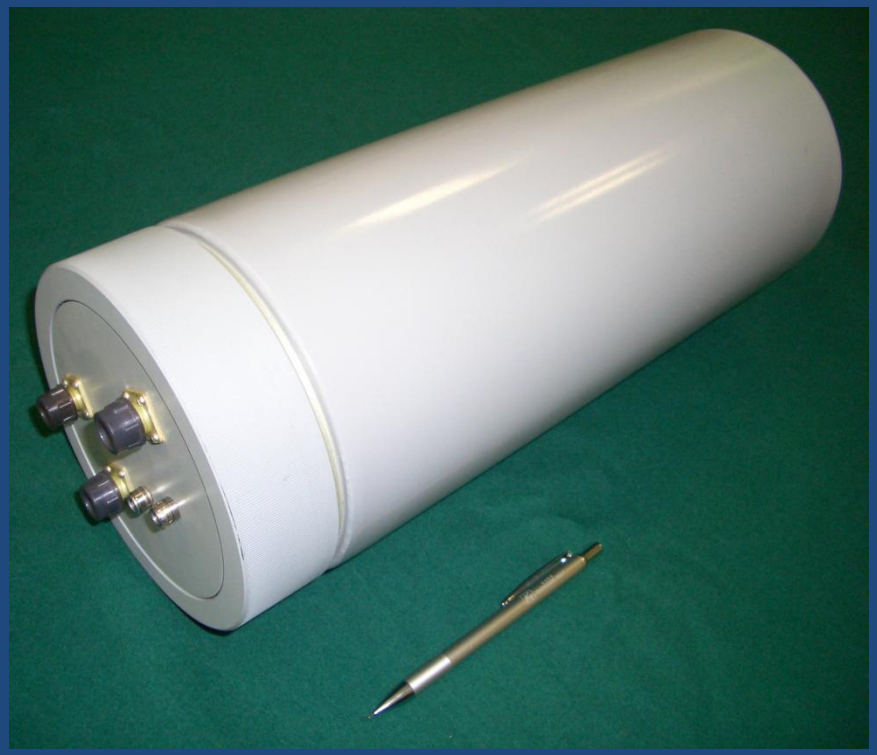
WG

RG



Детекторы

Детектор на основе сжатого ксенона



Энергетический диапазон……..	**0.1-5 МэВ**
Чувствительный объем …….	**2000 см^3**
Энергетическое разрешение для 662 кэВ ……	**(2,0 ± 0,2) %**
Эффективность регистрации гамма-квантов 662 кэВ ……	**(10,8 ± 0,5) %**
Рабочий диапазон температур..	**(-30÷+100)°C**
Габариты …….....	**Ø130×350 мм^3**
Масса …….	**6 кг**
Напряжение питания ……	**±24 В**
Потребляемая мощность……...	**5 Вт**

Задачи гамма-спектрометрического анализа

Целевая классификация

The CPG CdZnTe, compact NaI, and CdTe detectors pictured at the left, center, and right, respectively. The rectangular module at the right is the power supply for the Peltier cooler within CdTe detector.

Детекторы

Электроохлаждаемые HPGe-детекторы

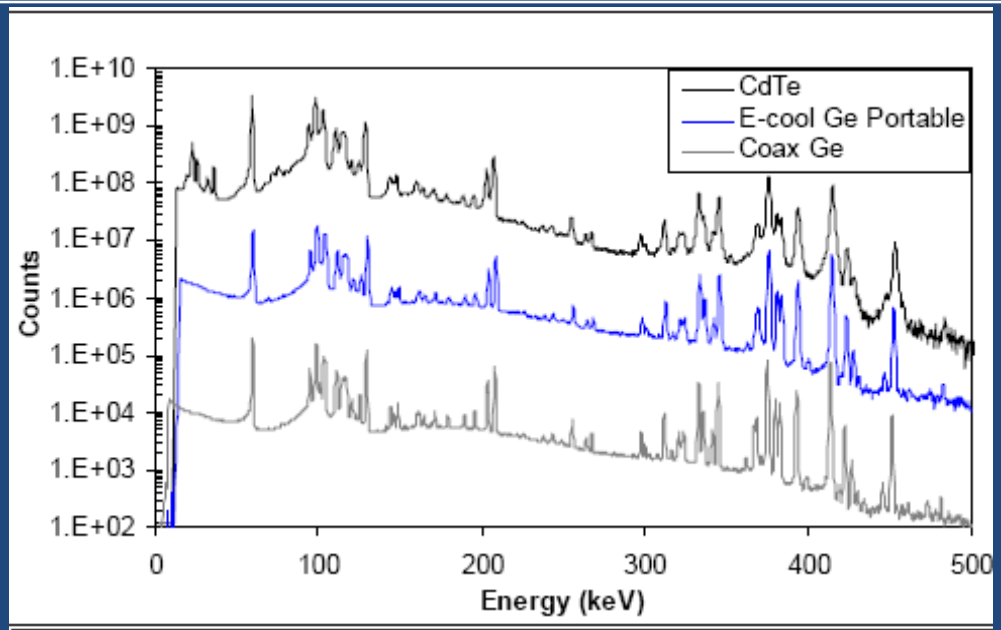
Trans-SPEC-DX-100 HPGe 65 x 50mm ε > 40%

Falcon5000 HPGe 60 x30mm

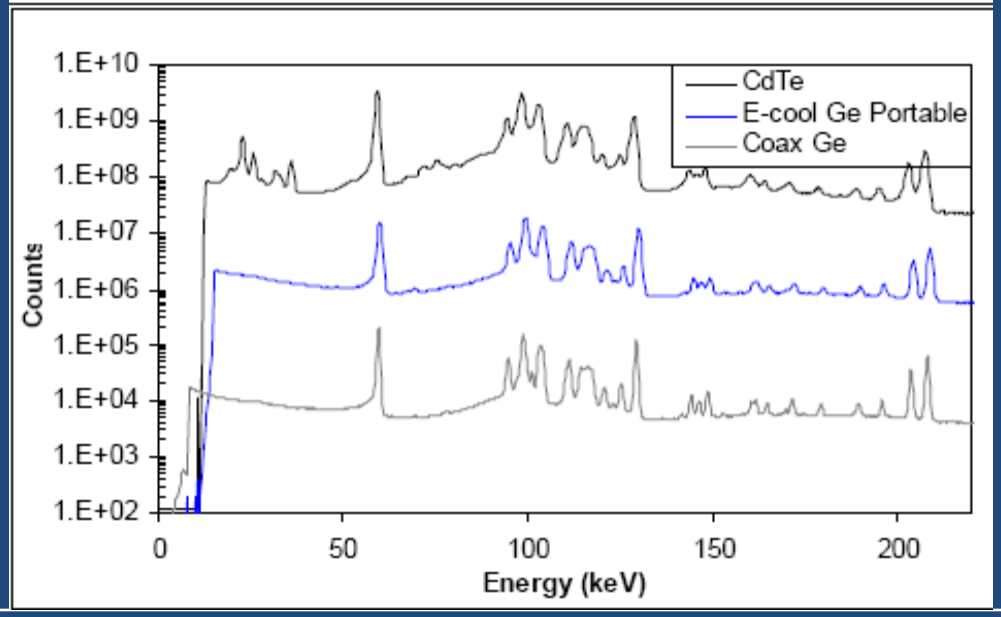
Micro-trans-SPEC HPGe50 x30mm

Детекторы

Высокоэнергетическая область: 0-500кэВ



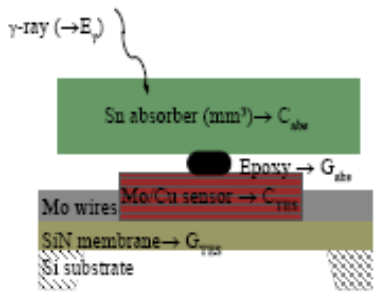
Низкоэнергетическая область: 0-200кэВ



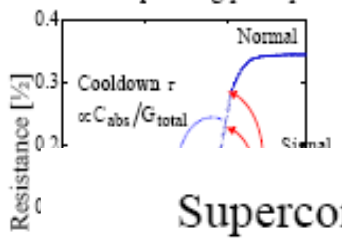
Superconducting Ultra-High Energy Resolution Gamma-Ray Spectrometers

Microcalorimeter Detectors

Detector cross section



Thermometer operating principle



Energy resolution $\delta E_{FWHM} \approx 2.355\sqrt{k}$

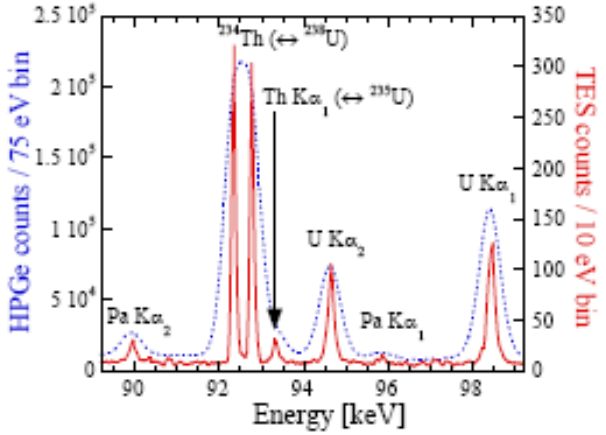
Speed $\tau \approx C_{absorber}/G$

Superconducting γ-Detector Performance

50 - 90 eV FWHM below 122 keV

Superconducting γ-ray spectrometers enable high-resolution spectroscopy in cases where Ge detectors are fundamentally limited by device physics.

LEU uranium spectrum at 92 keV

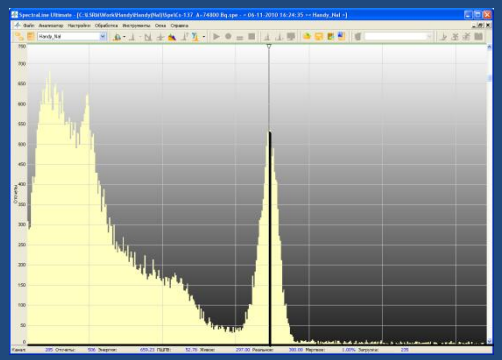


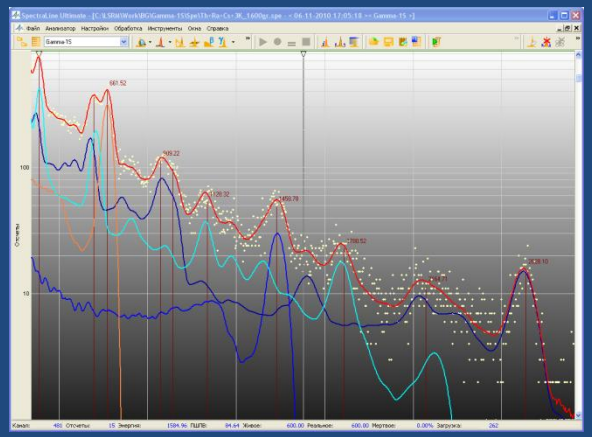
Analyzing closely-spaced lines reduces systematic errors in isotope analysis.

Основы гамма-спектрометрического анализа

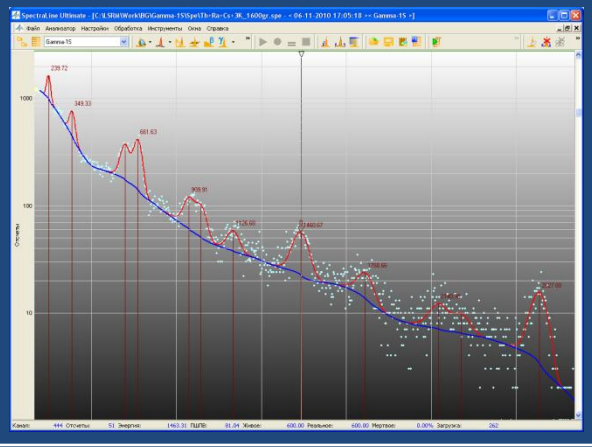
Два метода

- сравнение аппаратурных спектров.
- сравнение энергетических распределений





$$S(n)=\sum b_i \cdot s_i(n)$$



$$G(E)=\sum a_i \cdot g_i(E)$$

Основы гамма-спектрометрического анализа

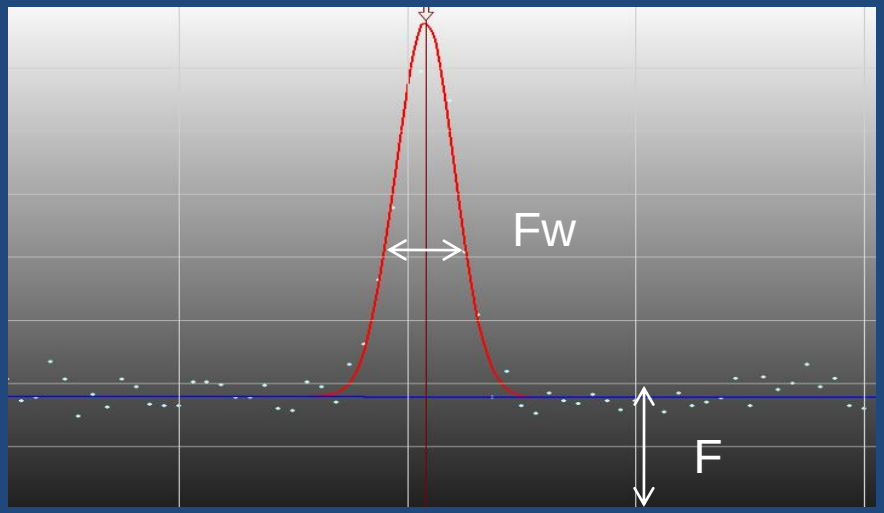
Расчет активности

$$G_i = \frac{S_i}{t \cdot \varepsilon(E_i)} \cdot K_{absorption} \cdot K_{summ} \cdot K_{true}$$

- G_i – количество гамма-квантов энергии E_i, испускаемых образцом
- S_i – площадь пика полного поглощения
- t – время набора спектра, обычно «живое»
- $\varepsilon(E_i)$- эффективность регистрации
- $K_{absorption}$ – ослабление гамма-излучения
- K_{summ}- эффекты случайного суммирования
- K_{true} – эффекты «истинного» суммирования

$$A_i = \frac{G_i}{I_i} \cdot 100 \qquad \bar{A} = \frac{\sum A_i \cdot \omega_i}{\sum \omega_i} \qquad \omega_i = \frac{1}{(\Delta A_i)^2}$$

Погрешность определения площади



$$\Delta = \frac{Fw}{2\sqrt{2\ln 2}} \approx \frac{Fw}{2.3} \qquad \lambda = \frac{S}{\sqrt{2\pi}\cdot\Delta}\cdot\frac{1}{F}$$

$$\sigma_S^2 \approx S\cdot\left(1+\frac{2}{\lambda}\right) \qquad \sigma_P^2 \approx \frac{\Delta^2}{S}\cdot\left(1+\frac{3}{\lambda}\right)$$

$$\sigma_S^2 = \frac{F\cdot Fw}{\sqrt{\frac{2\ln 2}{\pi}}} \approx 1.5\cdot F\cdot Fw$$

$$\sigma_S^2 = \frac{S}{1-exp\left(\frac{-2(x_1-x_2)^2}{2\cdot\Delta^2}\right)}$$

Таблица 1. Параметры измерительных кювет, используемых при измерениях на гамма-спектрометрах.

Поправки при расчете активности

$K_{absorption}$ Ослабление излучения

$$G = G_0 \cdot exp(-\mu \cdot \rho \cdot d)$$

$$K_{absorption} = exp\left(\left(\rho \cdot \mu(E) - \rho_o \cdot \mu_o(E)\right) \cdot d_{эфф}\right)$$

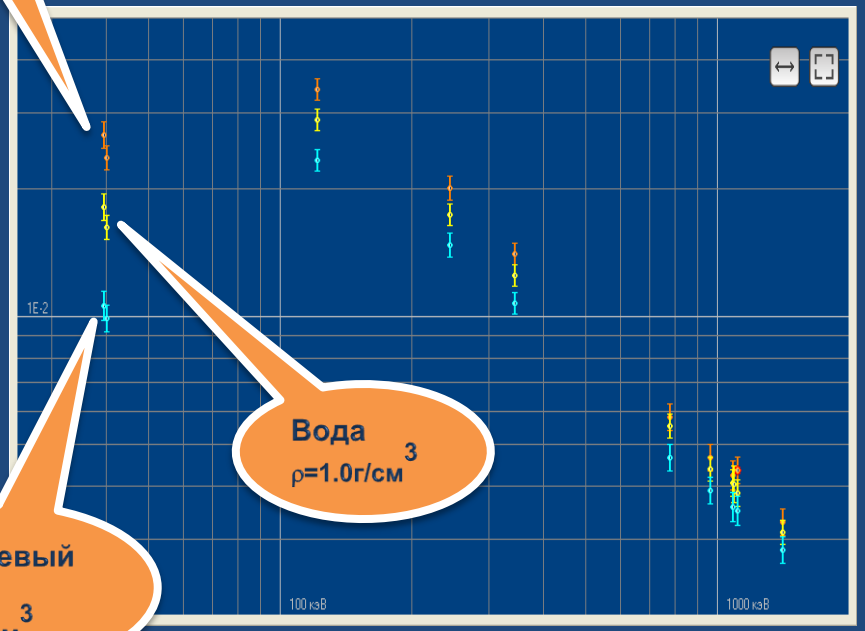
№	Измерительная кювета	Номинальный объем, л.	Внешние габариты, мм.	$d_{эфф}$, эффективная толщина, мм.
1.	Сосуд типа Маринелли	0.5	∅125 H=100	8(2)
2.	Сосуд типа Маринелли	1.0	∅150 H=110	17(2)
3.	Сосуд типа Маринелли	3.0	∅180 H=200	30(5)
4.	Геологический пробоотборник	0,88	∅ 150 H=50	30(2)
5.	Пластмассовая кювета типа “Дента”	0,12	∅ 75 H=35	18(2)

Поправки при расчете активности

$K_{absorption}$ Ослабление излучения

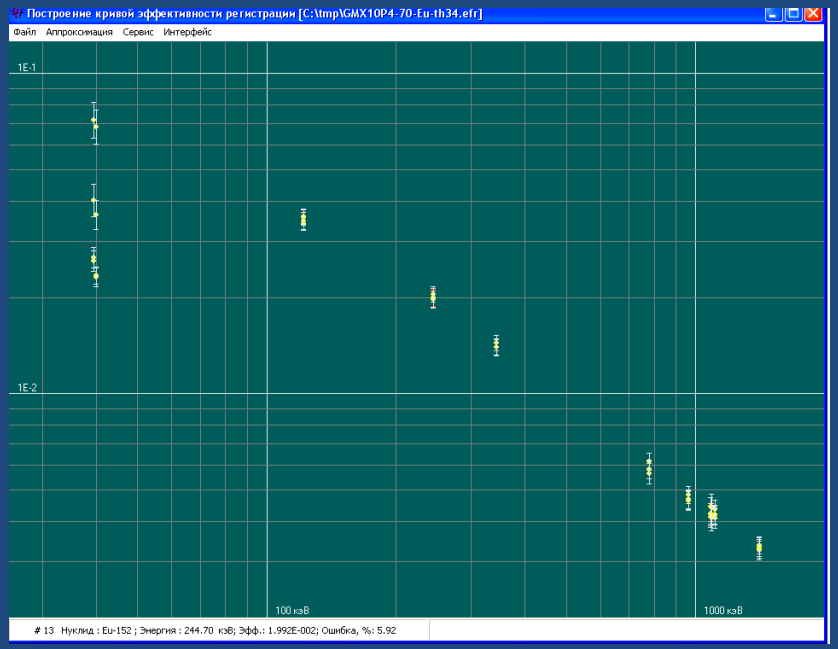
$$K_{absorption} = exp\left(\left(\rho \cdot \mu(E) - \rho_o \cdot \mu_o(E)\right) \cdot d_{эфф}\right)$$

Опилки
ρ=0.18г/см^3



Вода
ρ=1.0г/см^3

Кварцевый песок
ρ=1.7г/см^3

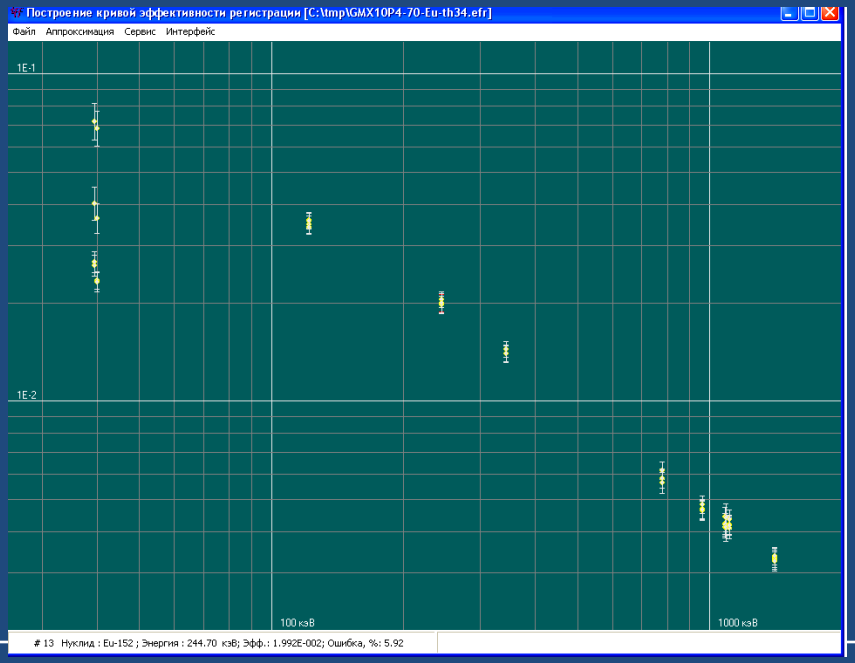


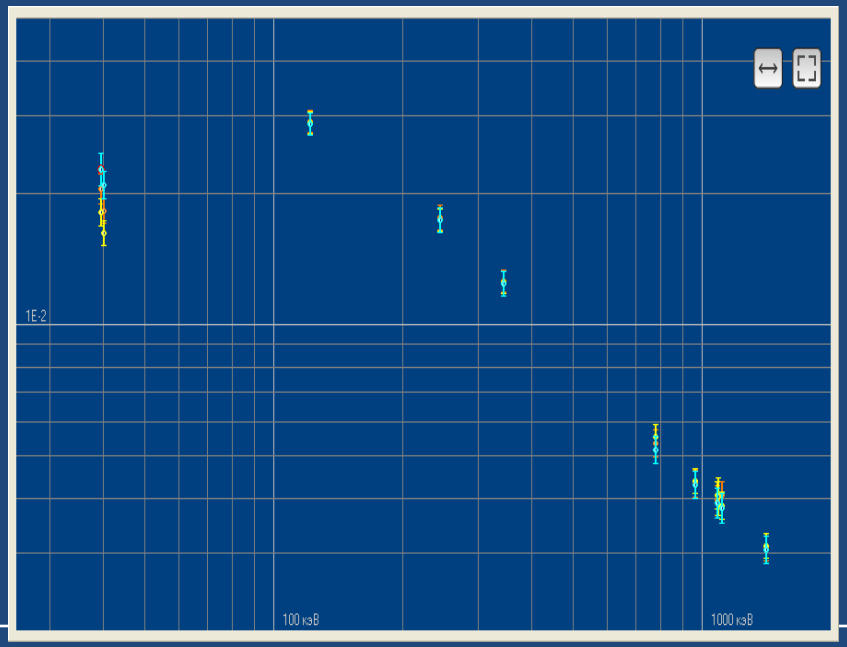
Поправки при расчете активности

$K_{absorption}$ - Ослабление излучения

$$G = G_0 \cdot \frac{1 - exp(-\mu \cdot \rho \cdot d)}{\mu \cdot \rho \cdot d}$$

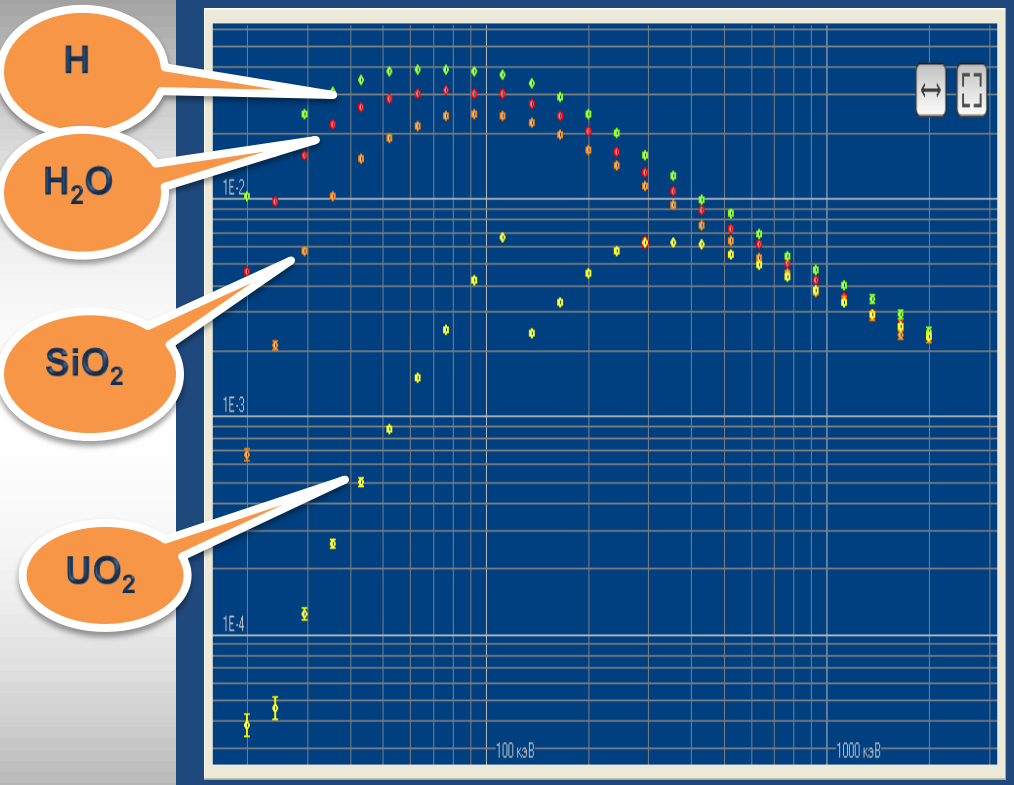
$$K_{absorbtion} = \frac{\left(1 - e^{\mu_0 \cdot \rho_0 \cdot t_{eff}}\right) \cdot \mu \cdot \rho}{\left(1 - e^{\mu \cdot \rho \cdot t_{eff}}\right) \cdot \mu_0 \cdot \rho_0}$$

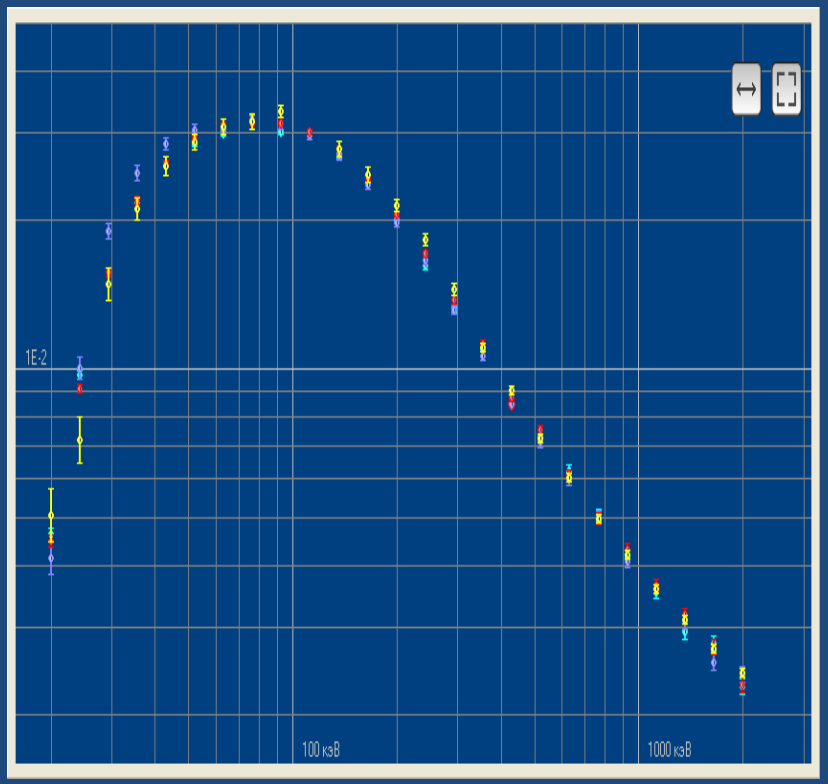




Поправки при расчете активности

$K_{absorption}$ Ослабление излучения





Поправки при расчете активности

K_{summ} - случайные суммирования

Составляет для спектрометров на базе HPGe-детекторов с аналоговым трактом **1-2% на 1000имп/сек**

- Метод генератора
- Режекция наложенных импульсов
- Коррекция «живого» времени по измеренному спектру

Поправки при расчете активности

K_{true} – эффекты «истинного» суммирования

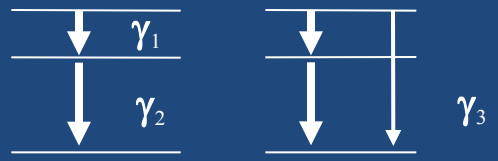
$C = S_{true} / S_{reg}$

C – корректирующий фактор
S – площади пика

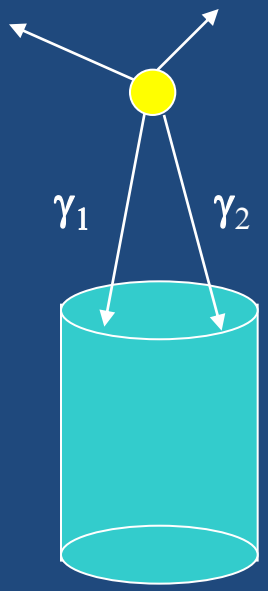
$C_1 = 1 - \varepsilon_t(E_2)$

$C_2 = 1 - \varepsilon_t(E_1)$

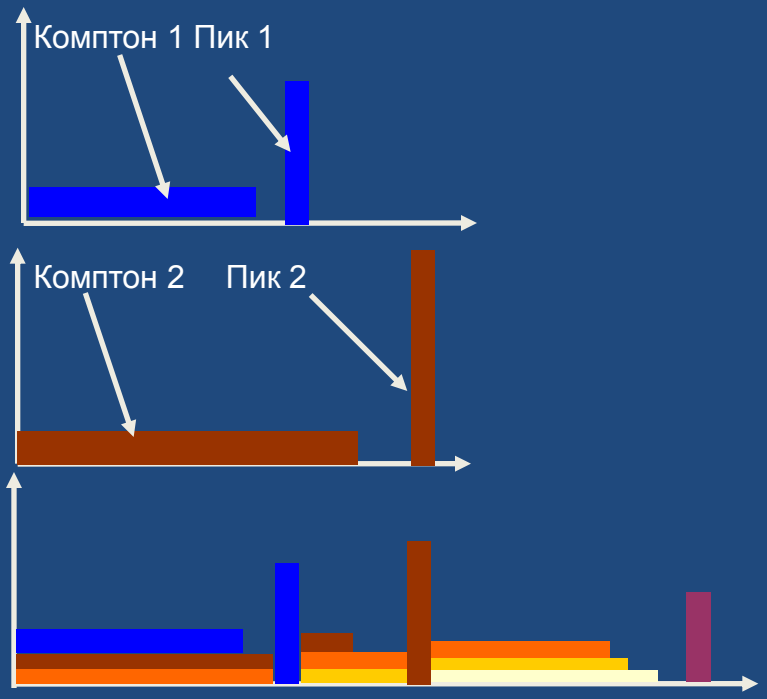
$C_3 = \varepsilon_1 * I_1 * \varepsilon_2 * I_2 / \varepsilon_3 * I_3$



$\varepsilon_t(E)$ – **полная эффективность регистрации**
$\varepsilon 1$, $\varepsilon 2$, $\varepsilon 3$ – **эффективность регистрации по пику полного поглощения, соответствующему переходам** $\gamma 1$, $\gamma 2$, $\gamma 3$,
C1, C2, C3 – корректирующие множители

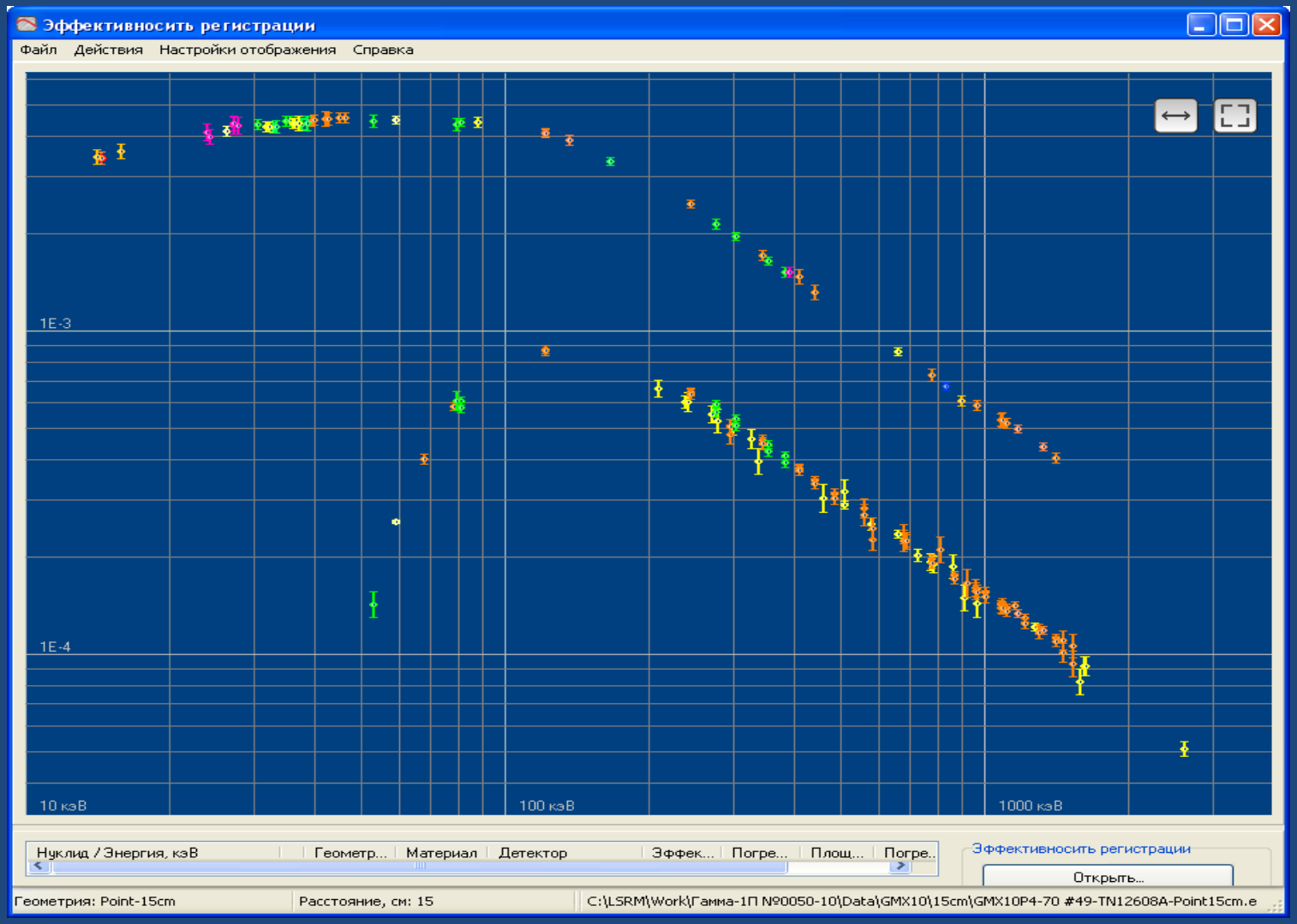


- Комптон 1+ Комптон 2
- Пик 1+ Комптон 2
- Пик 2+ Комптон 1
- Пик 1+ Пик 2



Детекторы

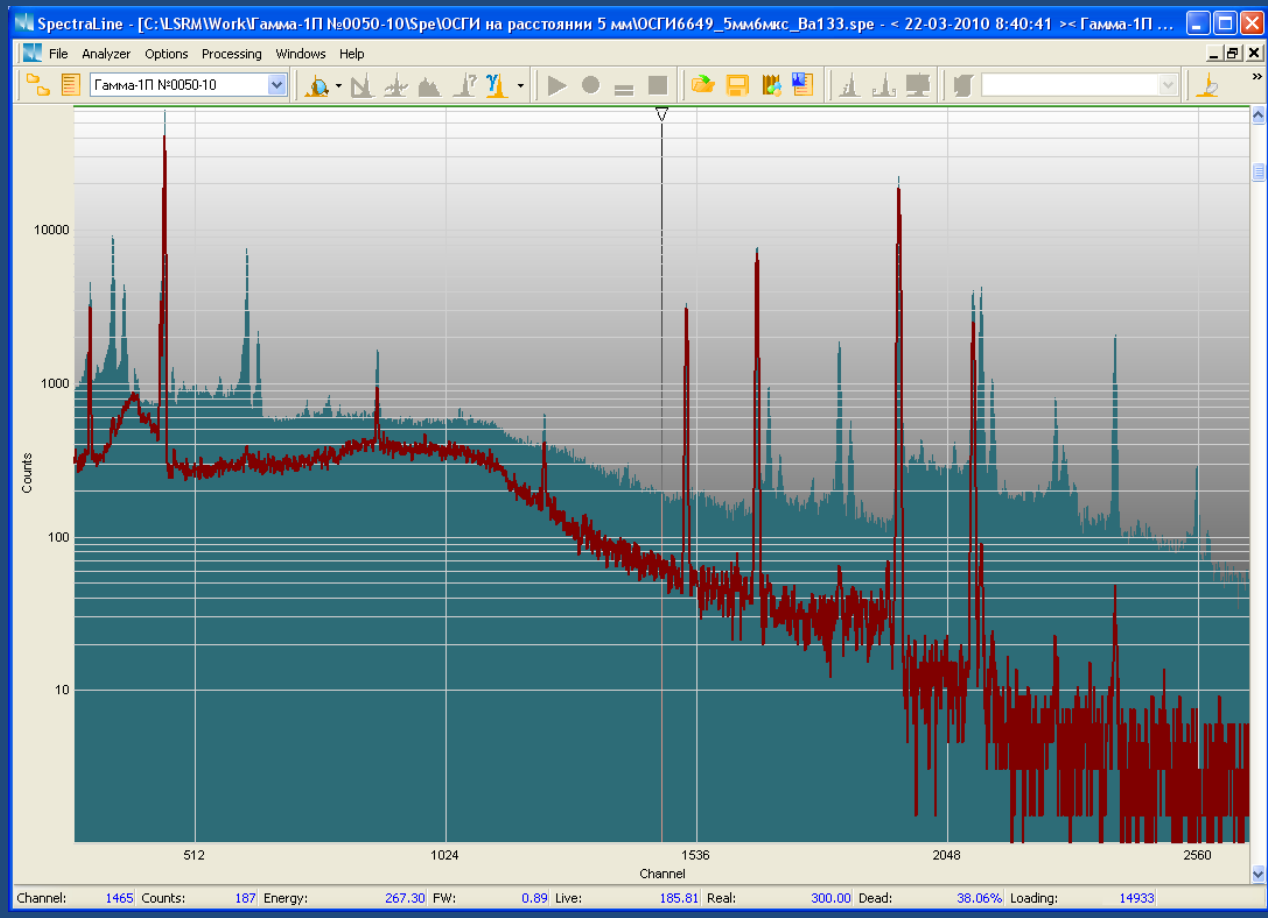
GEM & GMX



Поправки при расчете активности

K_{true} – эффекты «истинного» суммирования

Спектры ОСГИ (Ba-133) на расстоянии **25 см** и **5мм.**

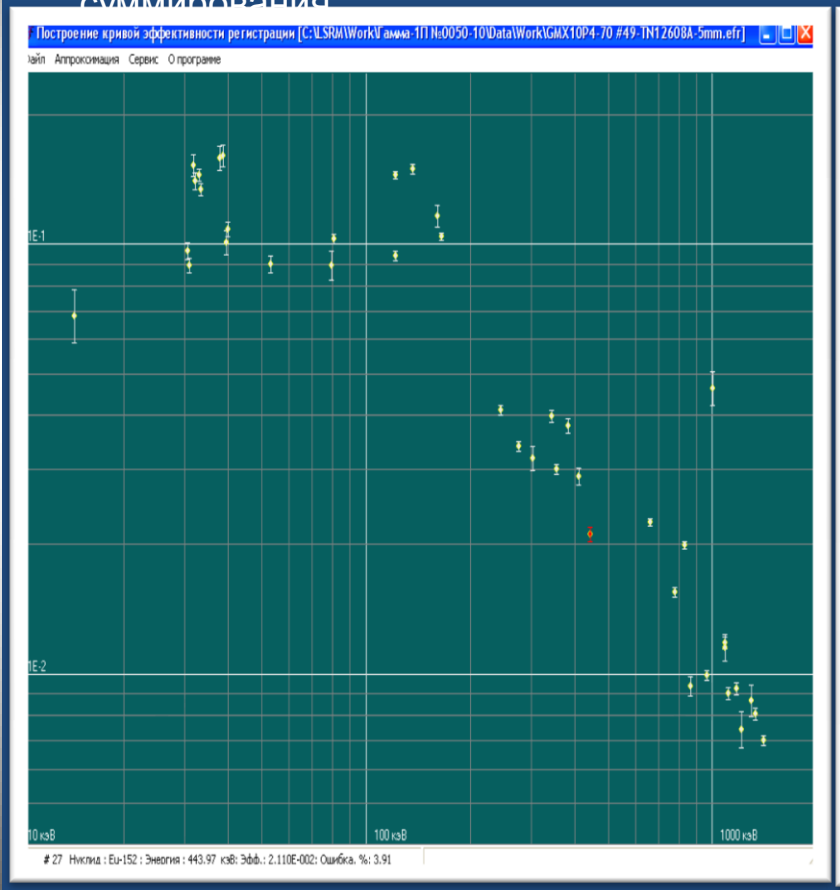


Поправки при расчете активности

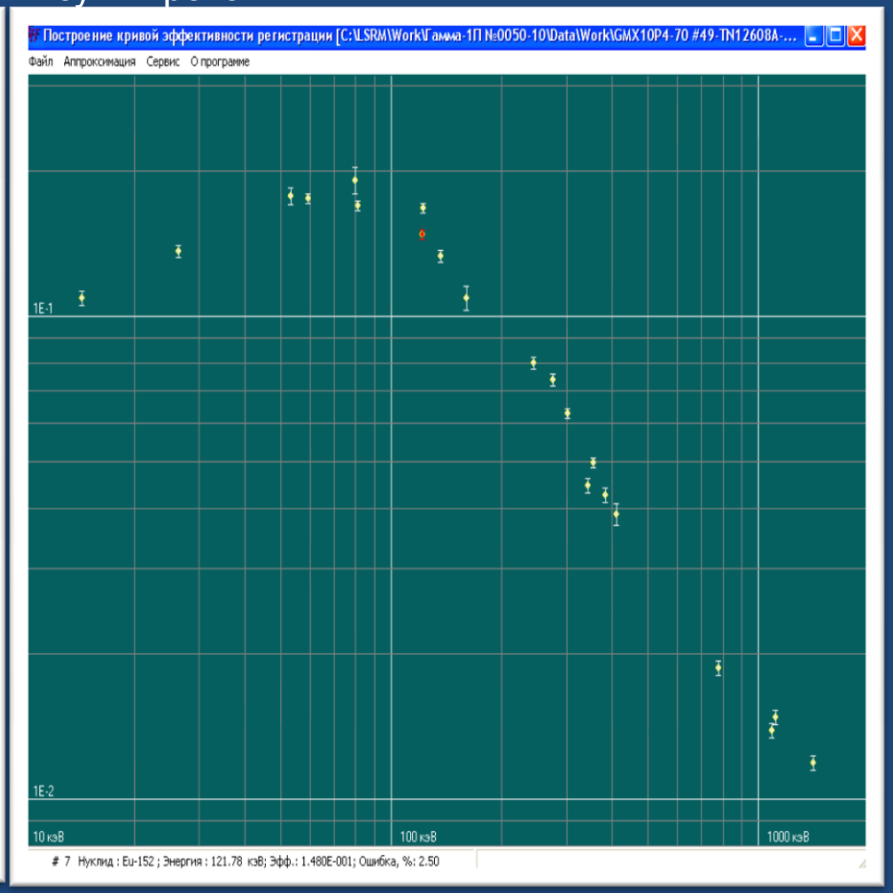
K_{true} – эффекты «истинного» суммирования

Эффективность регистрации для GMX10 от источников ОСГИ на крышке (5мм).

без учета эффектов каскадного суммирования



с учетом эффектов каскадного суммирования



Общие принципы

В основе идентификации лежит сравнение энергетического распределения измеренного спектра S(N) с энергетическим распределением отдельных радионуклидов $g_i(E)$.

- **Сравнение энергетических распределений**

$$S(N) \Rightarrow G(E) \qquad G(E) = \sum a_i \cdot g_i(E)$$

- **Сравнение измеренных спектров (Метод эталонных спектров,*Templates method)***

$$g_i(E) \Rightarrow s_i(N) \qquad S(n) = \sum b_i \cdot s_i(n)$$

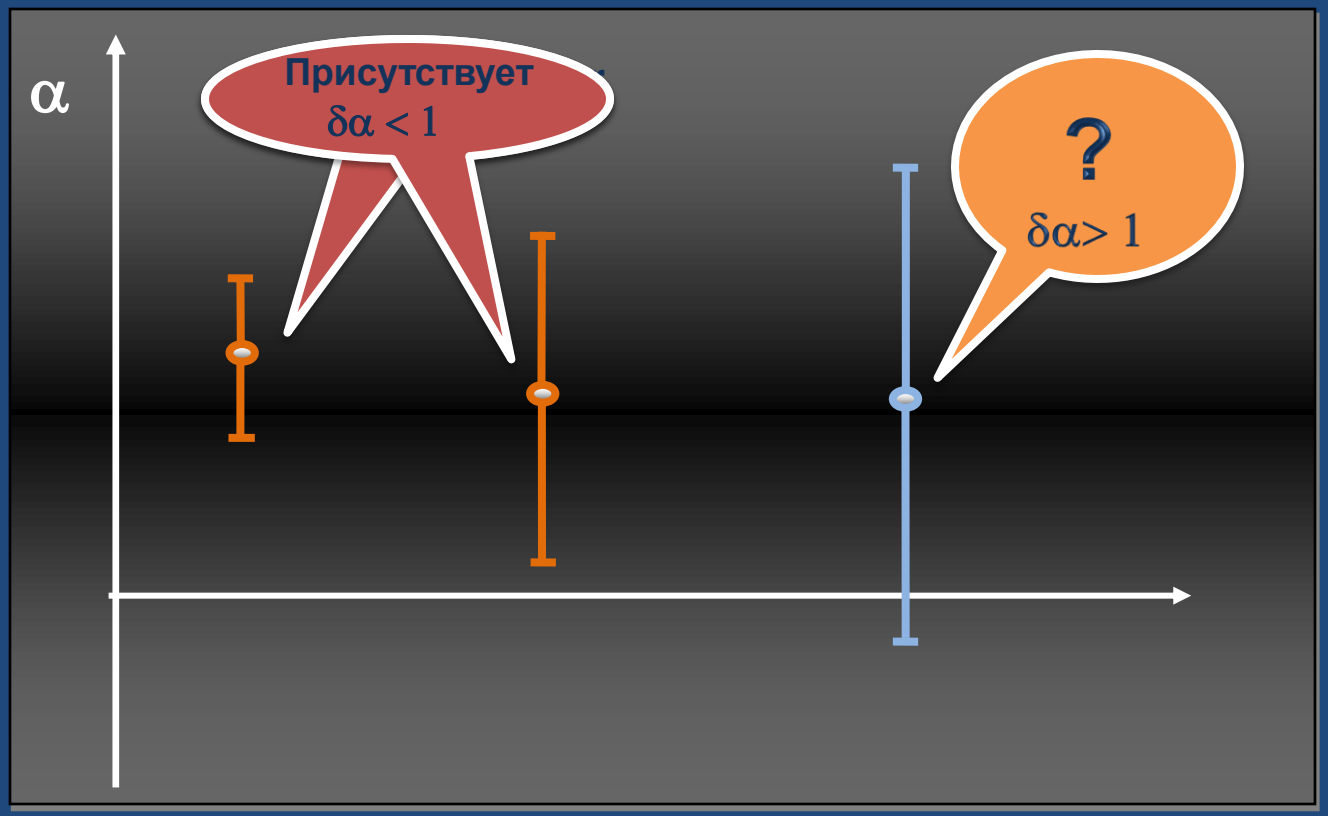
Если $\begin{cases} a_i > \Delta a_i \\ b_i > \Delta b_i \end{cases}$ **Нуклид присутствует в пробе**

Критерии идентификации

Что такое успешная идентификация ?
Каковы ее критерии?

Критерии идентификации

Статистическая достоверность $a_i > \Delta a_i \longleftrightarrow \delta a_i < 1$



Критерии идентификации

Полнота

DC (Dose Contribution)

$$DC = \frac{D_{unident}}{D_{total}} \cdot 100$$

$$D = \sum_i \frac{S_i \cdot E_i}{\varepsilon(E_i)}$$

$S_i \cdot E_i$ - **энергии и площади пиков**

$\varepsilon(E_i)$ - **эффективность регистрации**

Критерии идентификации

Однозначность

CI- Confidence index

$$CI = \log\left(\frac{1}{\delta E_1 \cdot \delta E_2 \cdot \delta E_3 \ldots \cdot \delta I_2 \cdot \delta I_3 \ldots}\right)$$

$\delta E_i, \delta I_i$ - Относительные погрешности энергии и интенсивности

[1] INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, Technical and functional specifications for border monitoring equipment, Revision 1, IAEA Nuclear Security Series No1, IAEA, Vienna (2008).

Критерии идентификации

Индекс доверия для различных детекторов

	HPGe	NaI	LaBr3
Cs-137	2.8	1.8	2.0
K-40	3.2	2.2	2.4
Na-22	6.7	3.8	4.1
Co-60	7.3	5.9	4.8
Cs-134	6.8	4.4	-
Ba-133	25.4	8.5	12.7
Eu-152	67.4	18.3	27.2
Th-232	97.9	16.6	17.9

Задачи гамма-спектрометрического анализа

Радионуклидный состав

- Калибровочные источники(ОСГИ+возможные примеси, ^{226}Ra,^{232}Th, ^{40}K)
- Естественные радионуклиды (^{226}Ra,^{232}Th ,^{40}K)+^{137}Cs
- Ядерные материалы –изотопы **Pu**, изотопы **U +** сопутствующие ^{233,235}U, **Th**, ^{237}Np, $^{241, 243}$Am, ^{252}Cf;
- Медицинские изотопы **~ 100**
- Металлы ^{54}Mn, ^{60}Co, ^{65}Zn, ^{94}Nb, ^{106}Ru+^{106m}Rh, ^{110m}Ag, ^{125}Sb+^{125m}Te, ^{134}Cs,^{137}Cs,^{152}Eu,^{154}Eu, ^{90}Sr+^{90}Y, ^{226}Ra,^{232}Th
- АЭС **~ 100-200**
- РАО для АЭС **~ 20**
- Допустимые сбросы РВ в поверхностные воды **~ 15**
- Непрерывный контроль теплоносителя **~ 50**
- Список ФТС России **~100**
- Список МАГАТЭ **~ 50**
- П4- НРБ(МЗА) **~ 300**
- П2 –НРБ (ПГП для населения) **~ 400**
- П1-НРБ (ПГП для персонала) **~800-1000**
- **ENSDF**-файл **~3500**

Детекторы $LaBr_3(Ce)$

Блоки и устройства детектирования сцинтилляционные БДС-Г-В380 и УДС-ГЦА-В380 на основе $LaBr_3(Ce)$ 38×38,51×51,76×76

АСПЕКТ®
НАУЧНО-ПРОИЗВОДСТВЕННЫЙ ЦЕНТР

Детекторы $LaBr_3(Ce)$

Основные технические характеристики УДС-ГЦА-В380

Диапазон измеряемых энергий	**0,05 .. 3** МэВ **0,05 .. 2** МэВ
Относительное энергетическое разрешение по линии **662** кэВ	не более **3,0%**
Интегральная нелинейность	не более **0,3%**
Временная нестабильность	не более **0,3%**
Максимальная загрузка	не менее **$2{,}5\times10^5$** $с^{-1}$
Время непрерывной работы от аккумулятора	не менее **10** ч
Интерфейс линии связи	**RS-232, RS-485, USB, Bluetooth**
Скорость передачи по последовательному каналу	от **9,6** до **115,2** кбит/с
Степень пылевлагозащиты	**IP54**
Рабочий диапазон температур	**–20 .. +50** °C
Масса	не более **1,6** кг
Габаритные размеры	∅**79×376** мм

Характерный собственный фон кристаллов $LaBr_3(Ce)$
(энергетическая область 70 – 3000 кэВ)

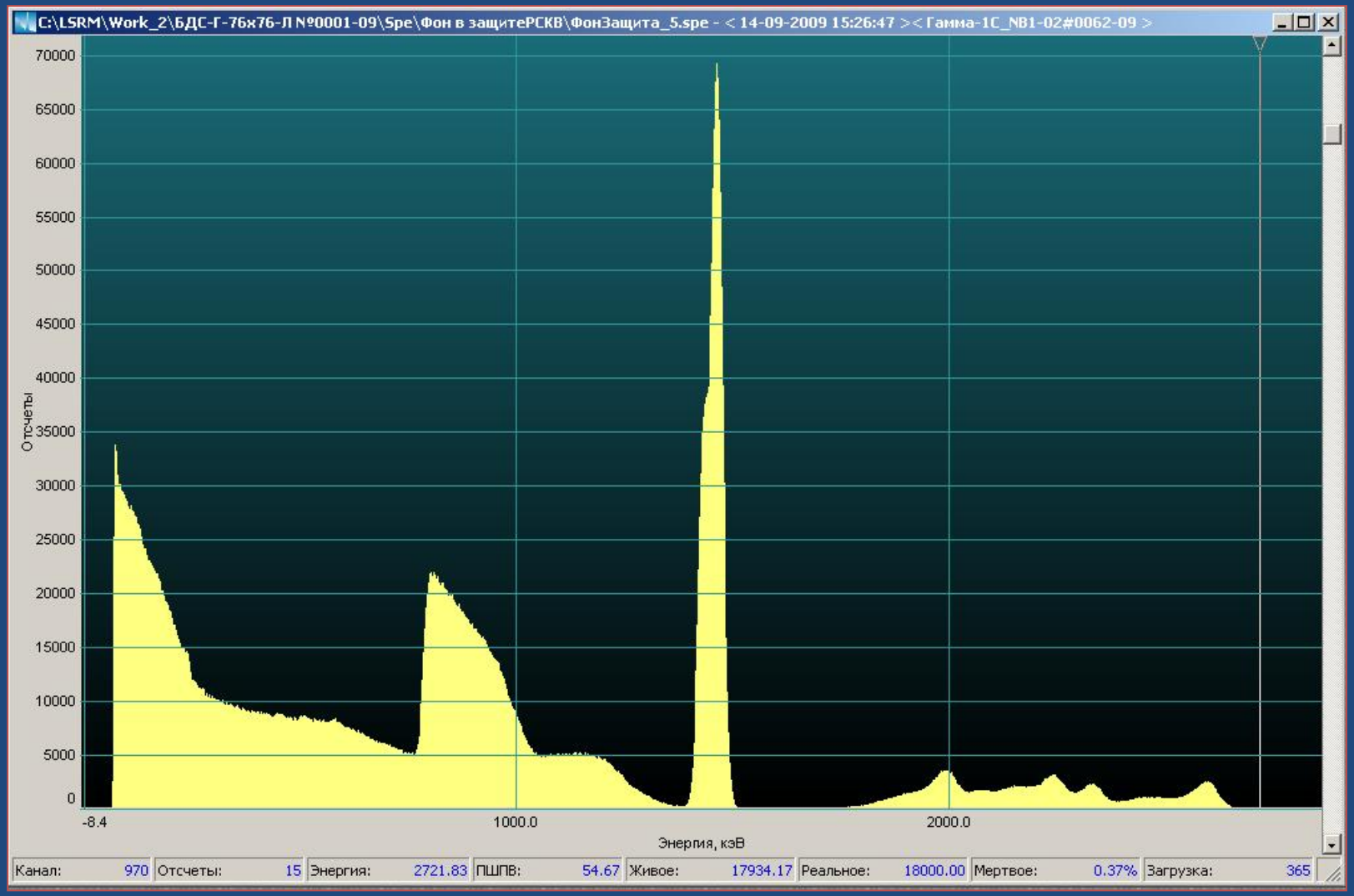
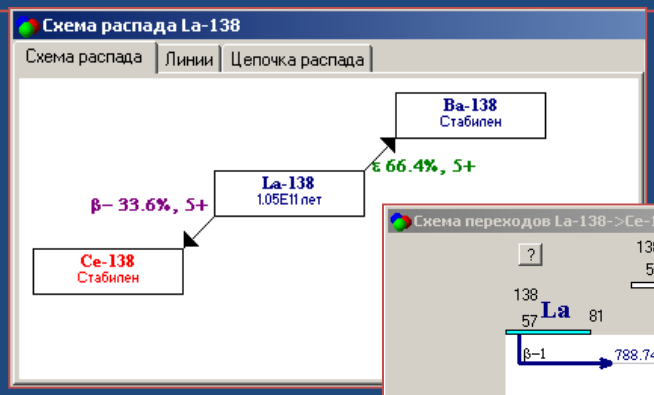
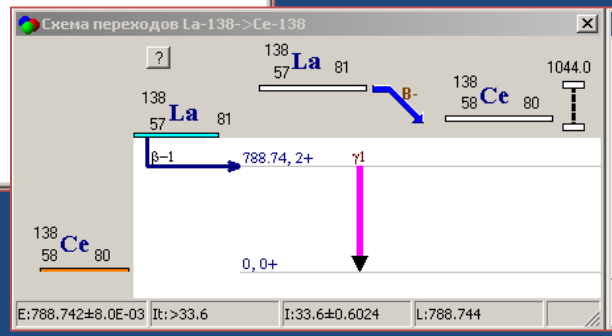


Схема распада ^{138}La





Список переходов, уровней и линий

Гамма | Бета

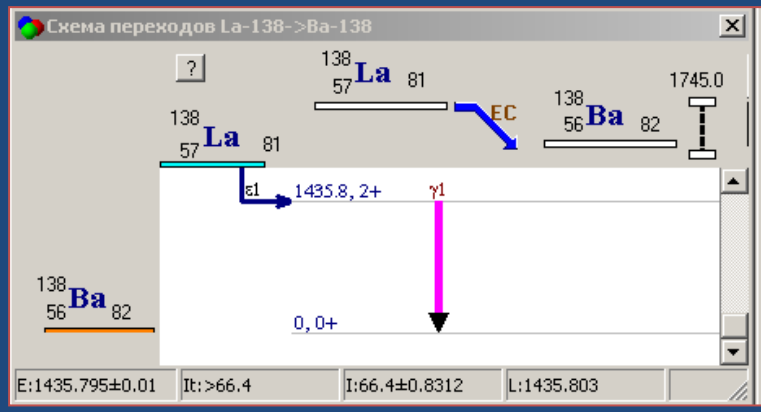
№	Тип	Энергия, кэВ	Интенсивн.
1	B-	252.0±12.0	33.643±0.717

Список переходов, уровней и линий

Гамма | Бета

№	С уровня	Энергия, кэВ	Интенсивн. перехода	Интенсивн. излучения	Коэф. конверсии
1	788.744	788.742±8.0E-03	>33.6	33.6±0.6024	0.0E00
		4.47		6.7±1.7	X
		31.8171±3.0E-04		10.98±0.17	X
		36.4		7.37±0.17	X
		32.1936±3.0E-04		20.3±0.3	X

Закрыть



Список переходов, уровней и линий

Гамма | Эл.захват

№	Энергия, кэВ	Интенсивн.
1	309.197±5.001	66.5753±0.8349

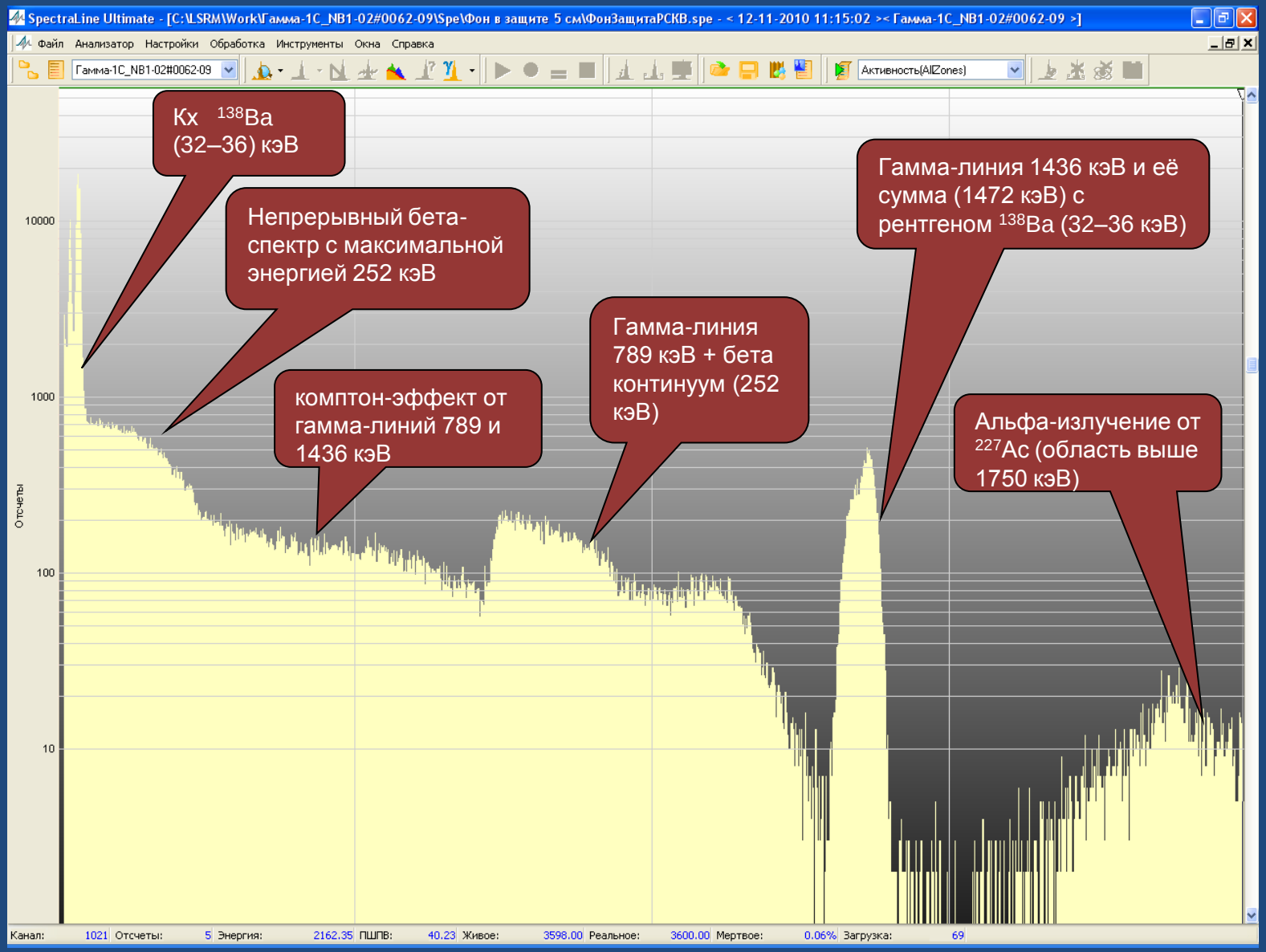
Список переходов, уровней и линий

Гамма | Эл.захват

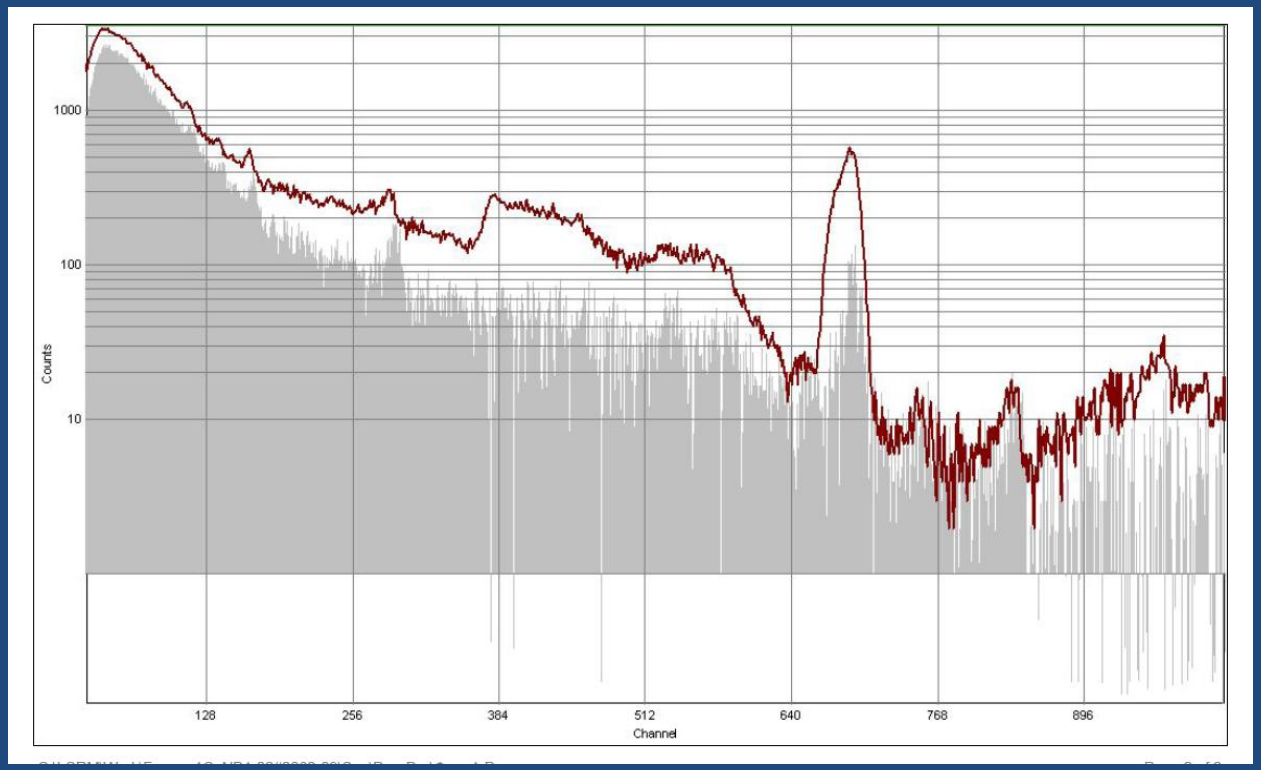
№	С уровня	Энергия, кэВ	Интенсивн. перехода	Интенсивн. излучения	Коэф. конверсии
1	1435.803	1435.795±0.01	>66.4	66.4±0.8312	0.0E00
		4.47		6.7±1.7	X
		31.8171±3.0E-04		10.98±0.17	X
		36.4		7.37±0.17	X
		32.1936±3.0E-04		20.3±0.3	X

Закрыть

Детекторы $LaBr_3(Ce)$

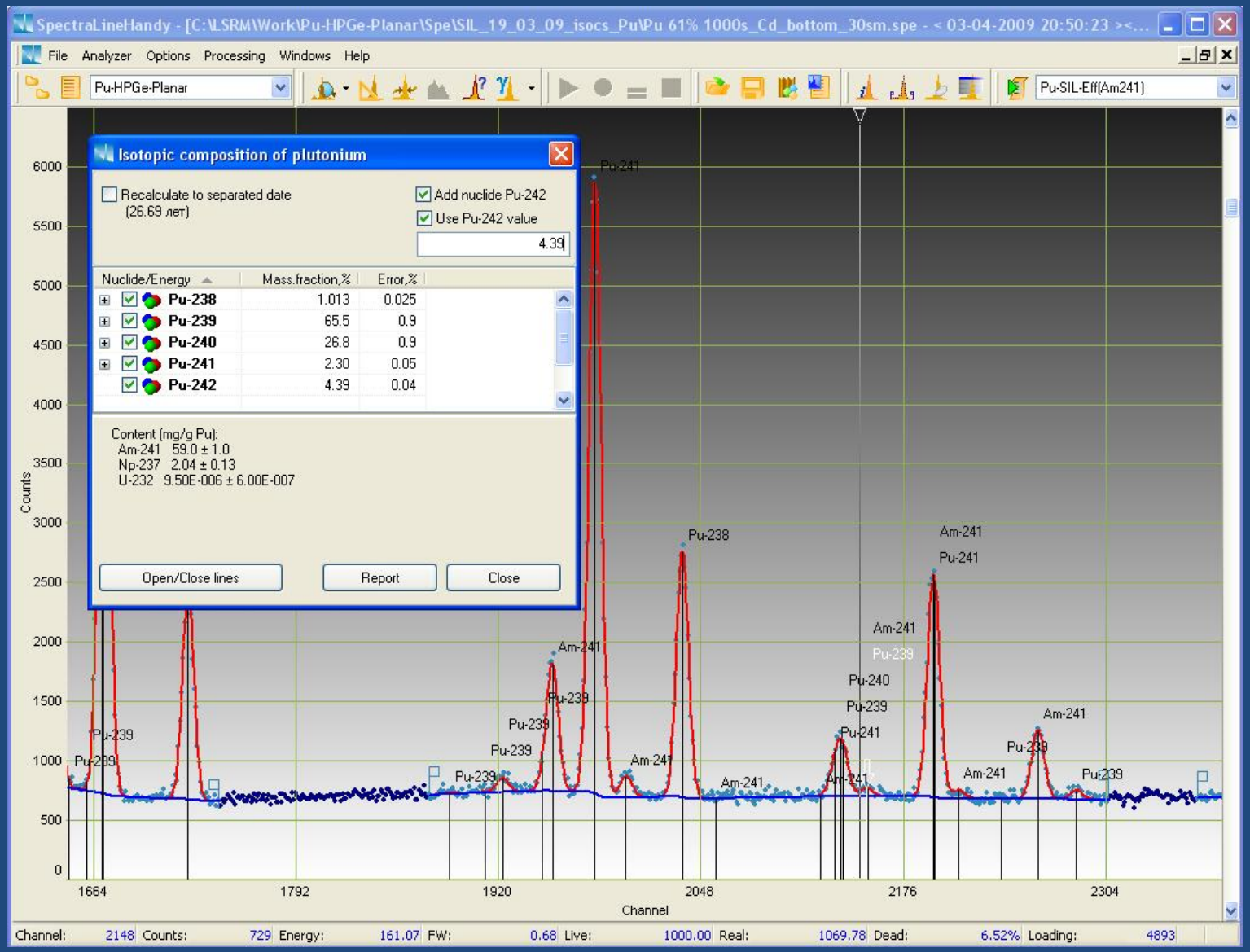


Детекторы $LaBr_3(Ce)$

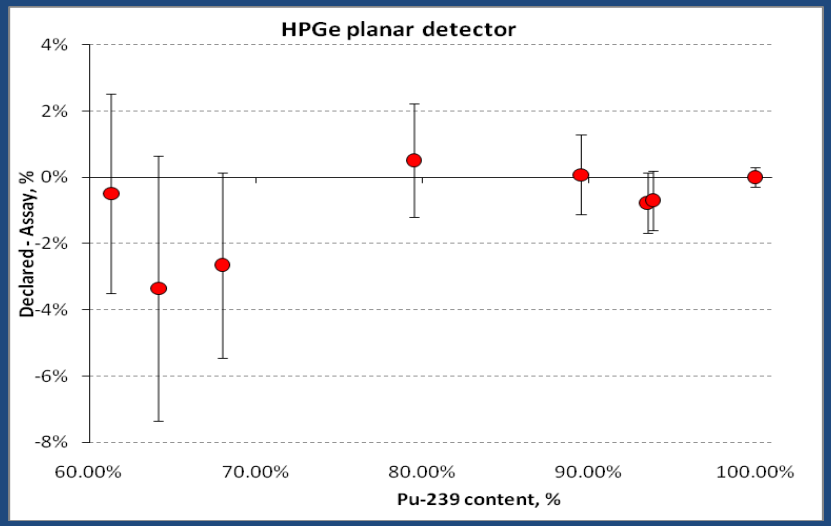


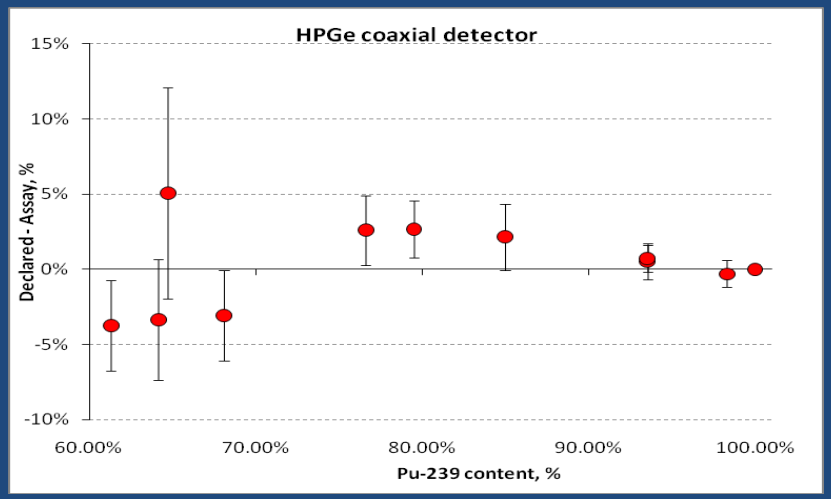
Фоновый спектр измеренный на спектрометре с LaBr3-детектором до и после вычитания собственного фона детектора.

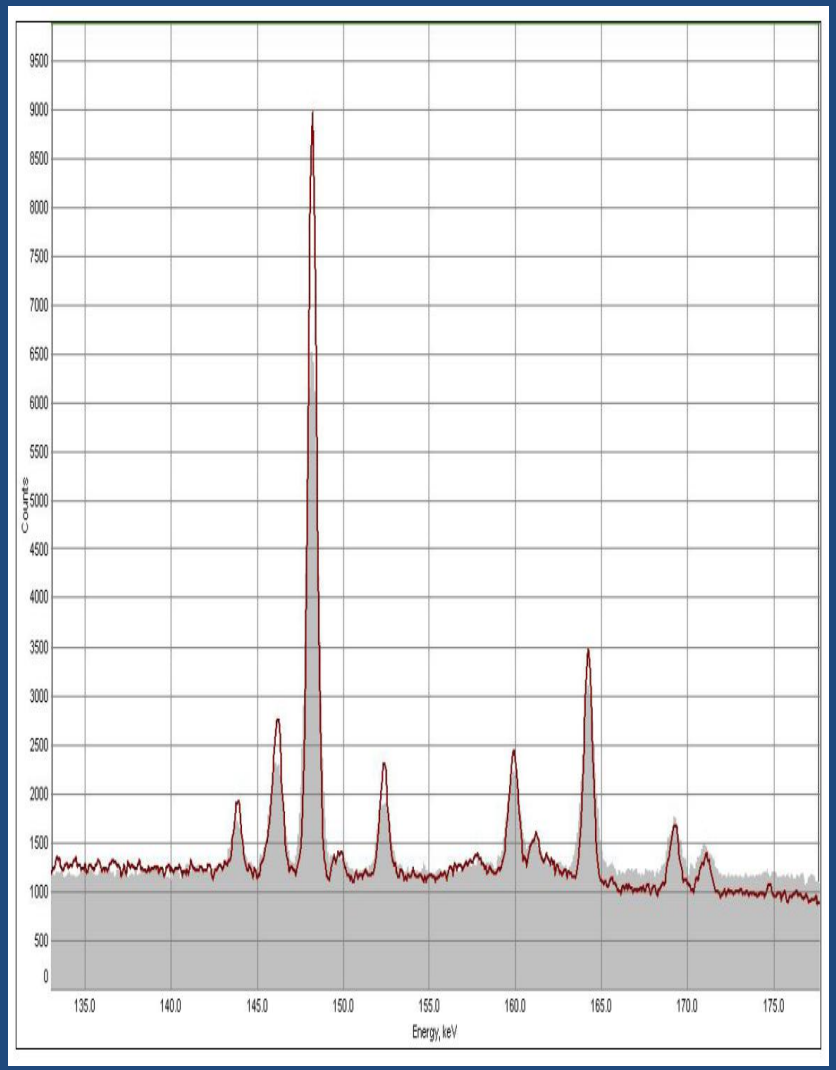
Изотопный состав Pu



Изотопный состав Pu

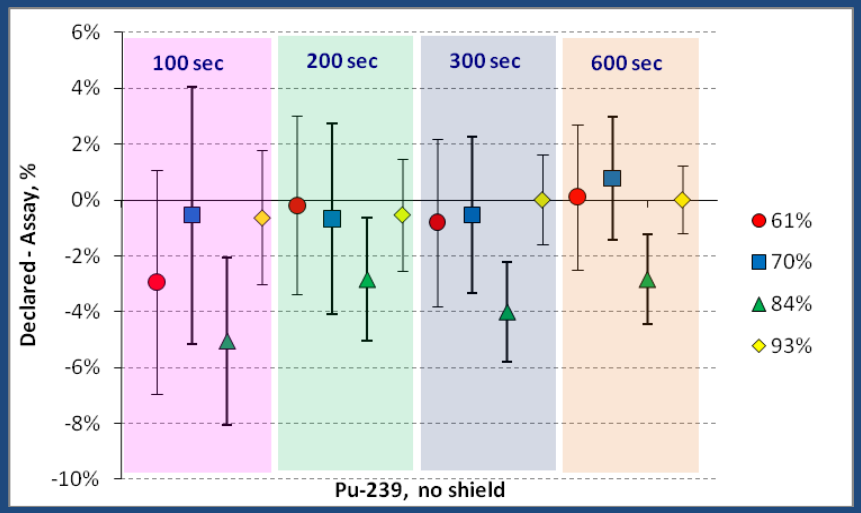


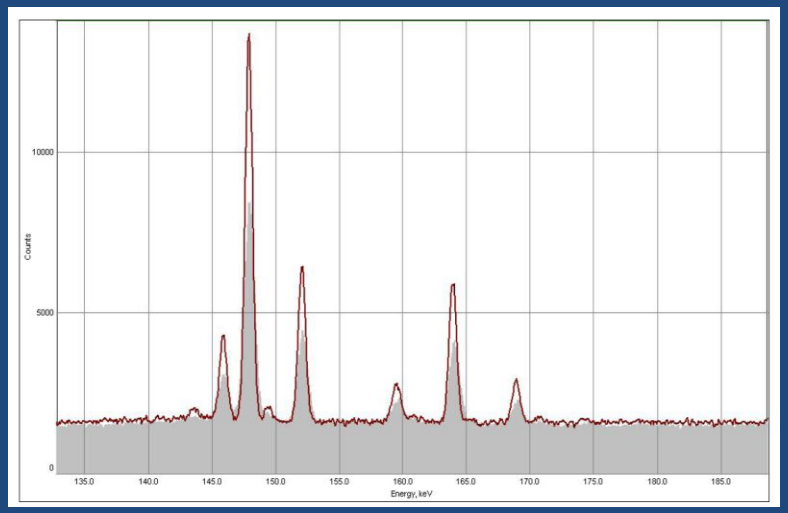




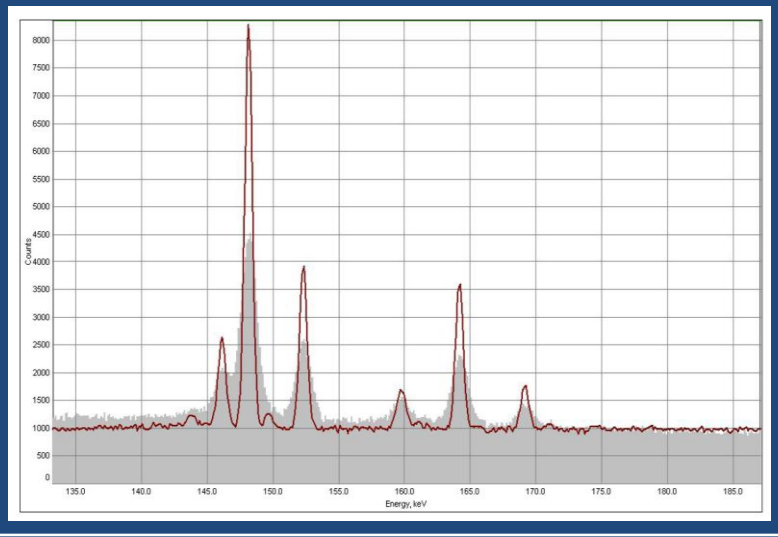
Изотопный состав Pu –электроохлаждаемые HPGe-детекторы

Falcon 5000

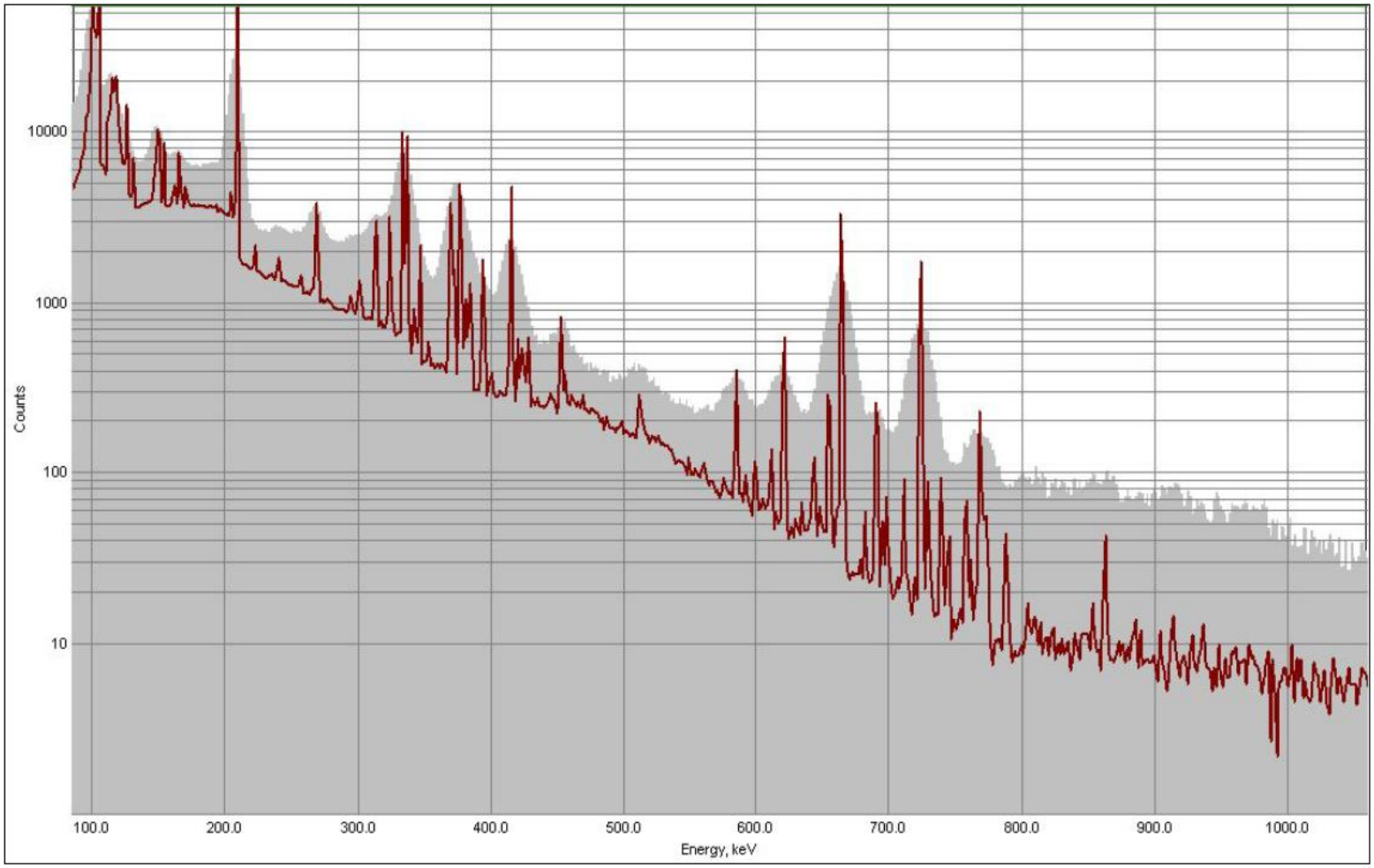




Micro-trans-SPEC

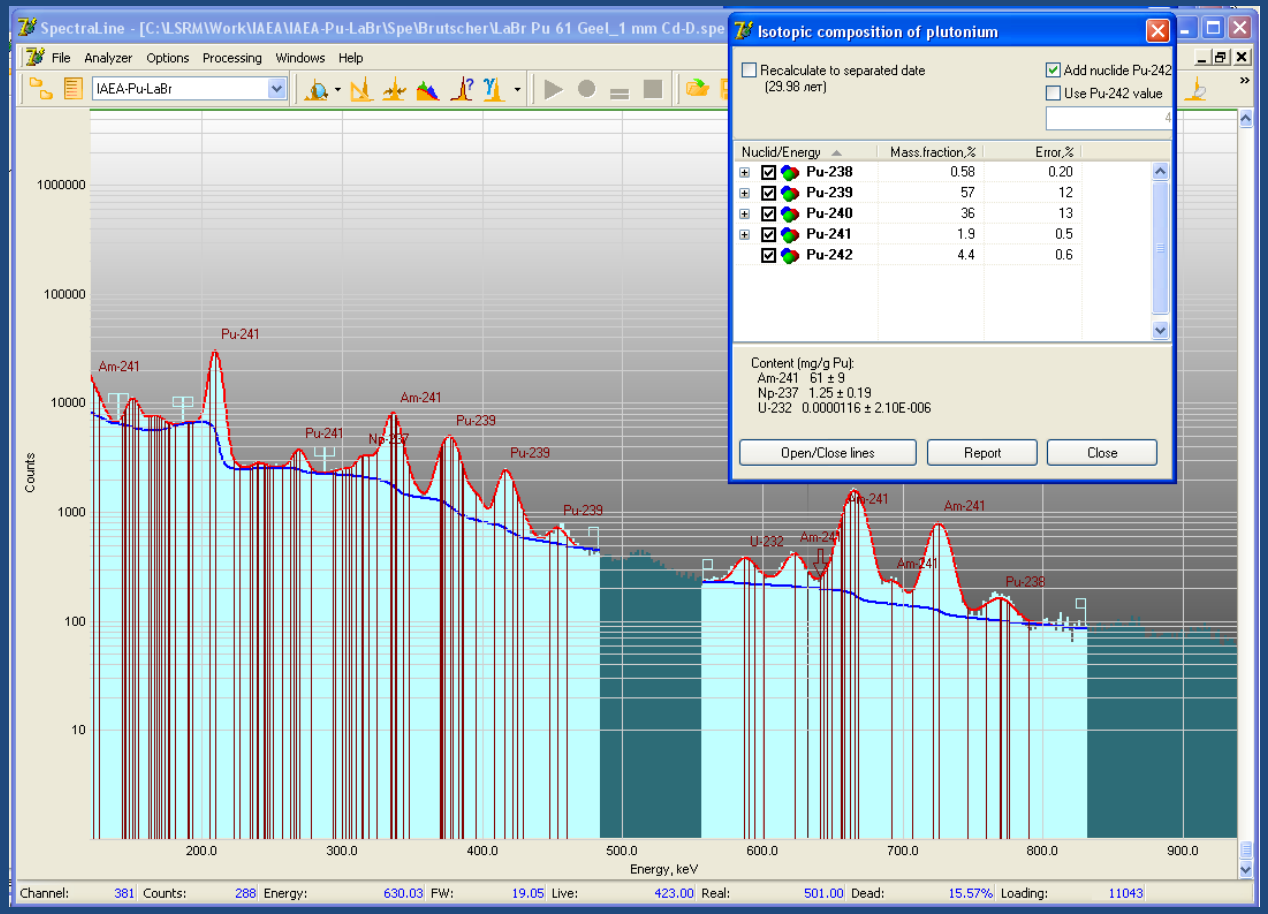


Изотопный состав Pu



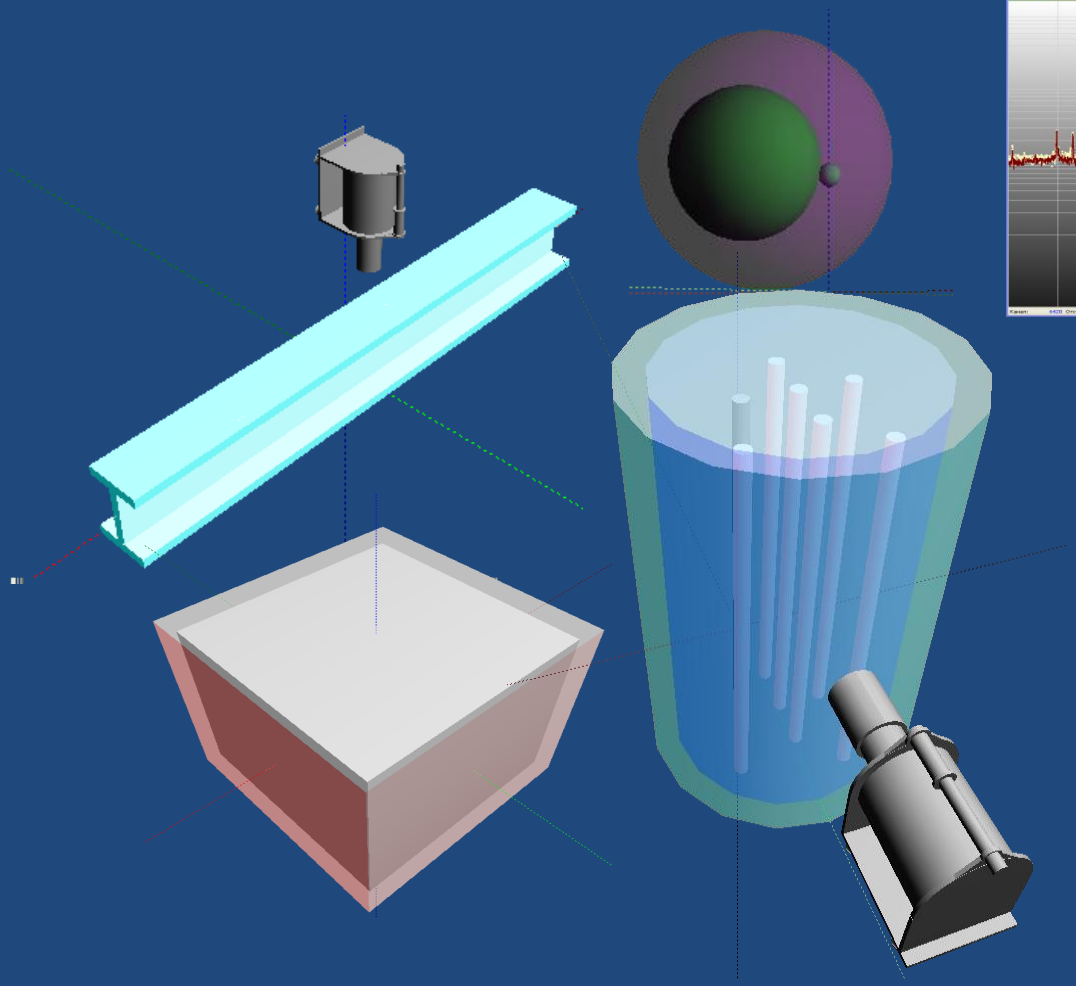
Спектры плутониевого образца, измеренные на планарном HPGe-детекторе и LaBr3- детекторе.

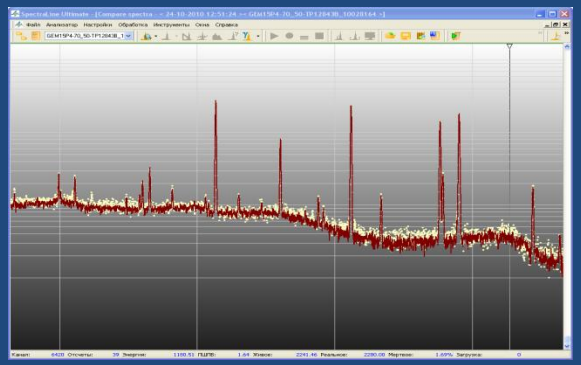
Изотопный состав Pu $LaBr_3$

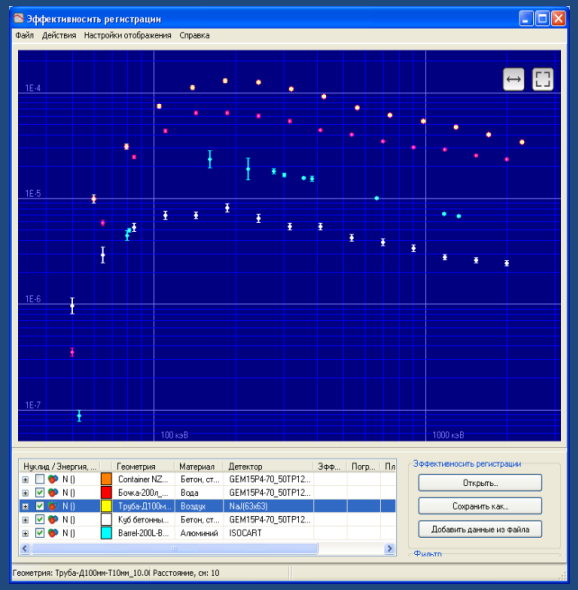


	Tlive	Pu-238	Pu-239	Pu-240	Pu-241	Am-241	Np-237	U-232*10^{-6}
RG	100	0.58(20)	57(12)	36(13)	1.9(5)	6.1(9)	0.125(20)	1.16(21)
WG	200	<0.07	89(10)	11(10)	0.051(14)	0.52(10)	0.012(7)	0.013(11)

Моделирование спектров: EffMaker



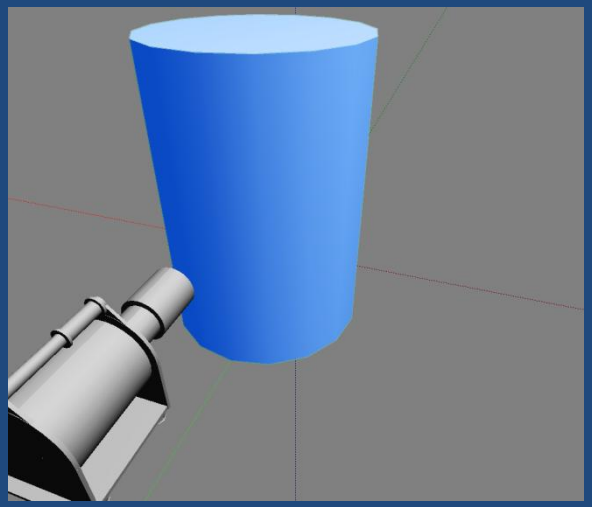


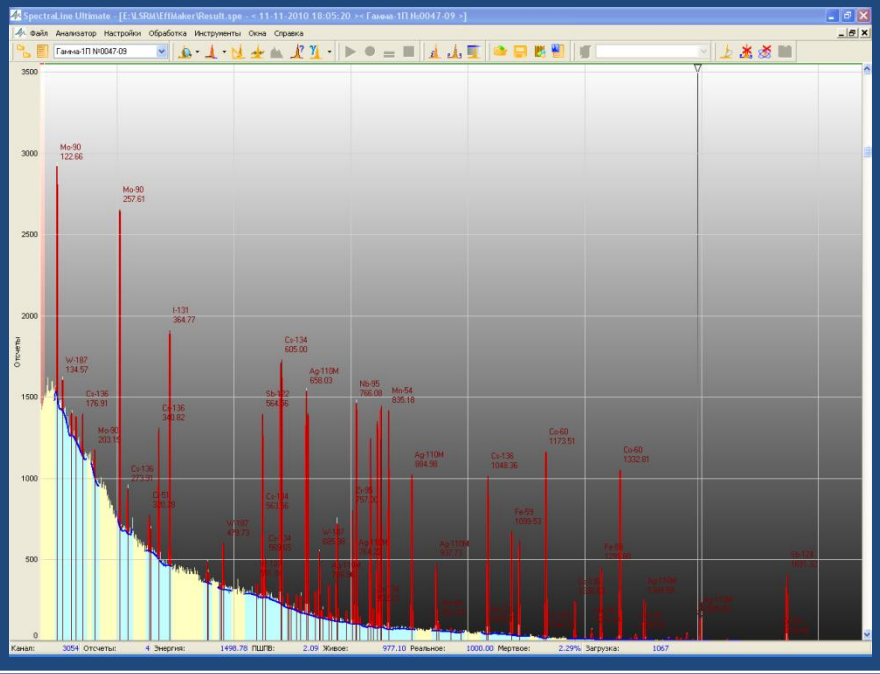


Паспортизация ЖРО

«200-литровая бочка»

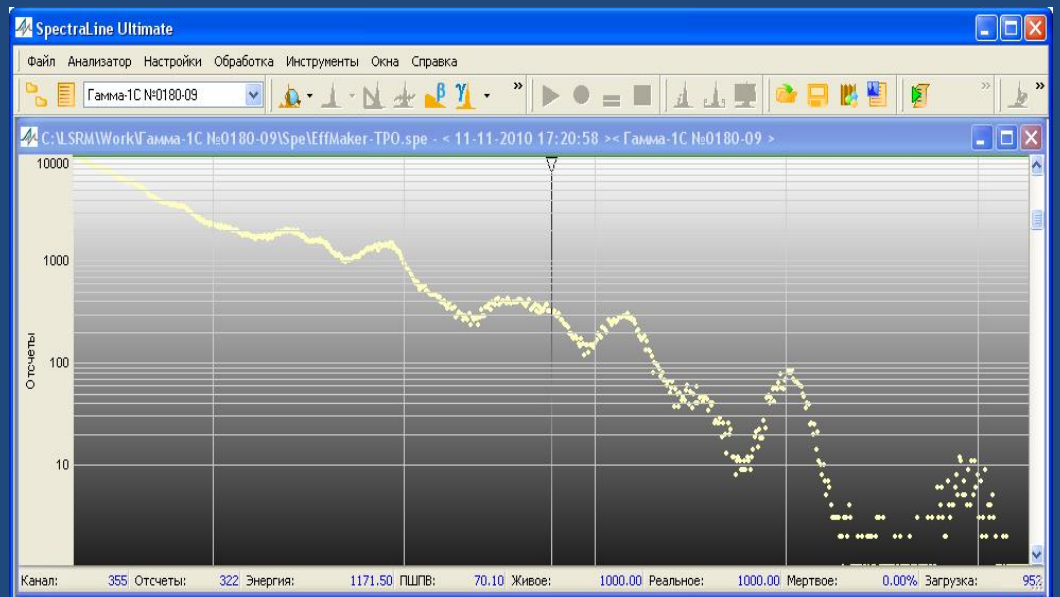
Mn-54	312.1 сут
Fe-59	44.5 сут
Co-58	70.86 сут
Co-60	5.275 лет
Zn-65	244.1 сут
Mo-90	0.2363 сут
Zr-95	64.03 сут
Nb-95	34.99 сут
Ag-110M	249.76 сут
Sb-122	2.724 сут
Sb-124	60.2 сут
I-131	8.021 сут
Cs-134	2.06 лет
Cs-136	13.16 сут
Cs-137	30.04 лет
Cr-51	27.7 сут
W-187	23.72 час



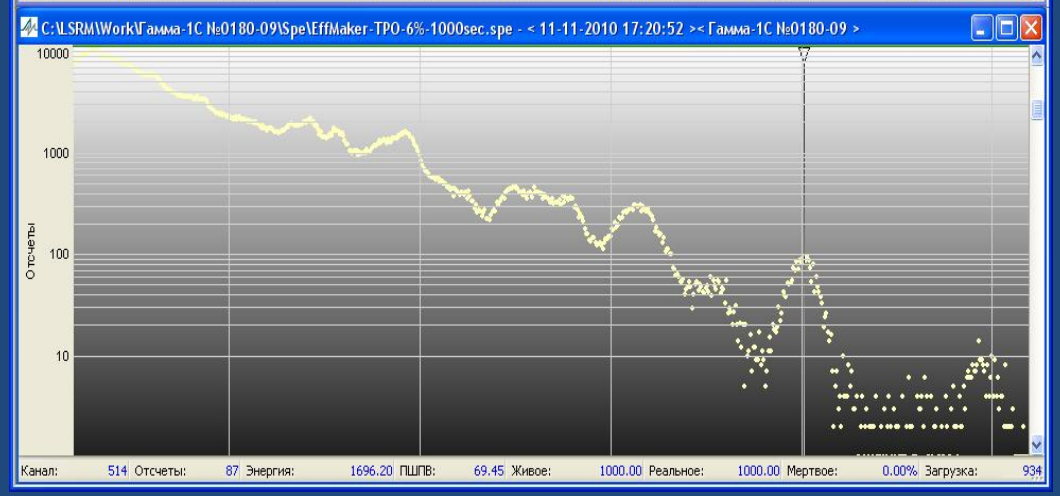


Паспортизация ЖРО NaI-63x63мм

500 Бк/кг каждого



NaI(63x63)
Fw=7.8%



NaI(63x63)
Fw= 6%

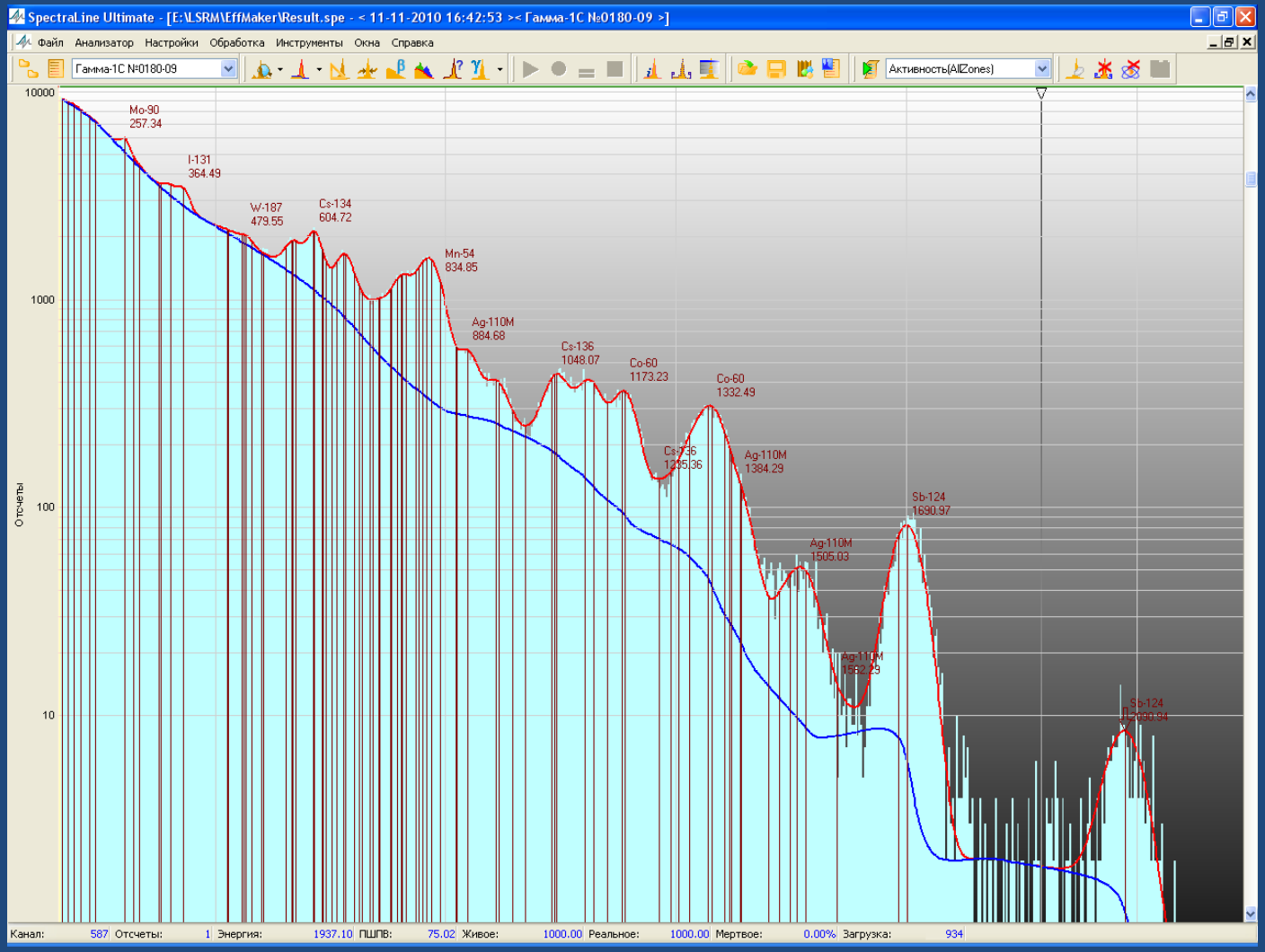
Паспортизация ЖРО

Сравнение верхних пределов измеряемой активности A_{UL} для NaI-63x63мм и HPGe(40%)

Радионуклиды	NaI(63x63)		HPGe(40%)
	A_{UL}, Бк/кг	A_{UL}, Бк/кг	A_{UL}, Бк/кг
Co-60	2.6	2.6	0.3
I-131	4	3	1.1
Mo-90	4	4	1.0
Sb-122	5	5	0.7
Sb-124	5	2.7	0.6
Fe-59	6	4	0.6
Cs-134	6	3.2	0.8
Cs-136	7	2.3	0.3
Ag-110M	8	2.8	0.4
Nb-95	8	5	0.6
Zn-65	10	6	1.1
Co-58	10	3.3	0.4
Cs-137	11	3	0.5
Mn-54	11	3.2	0.6
Zr-95	11	4	0.9
W-187	16	11	1.5
Cr-51	30	30	8

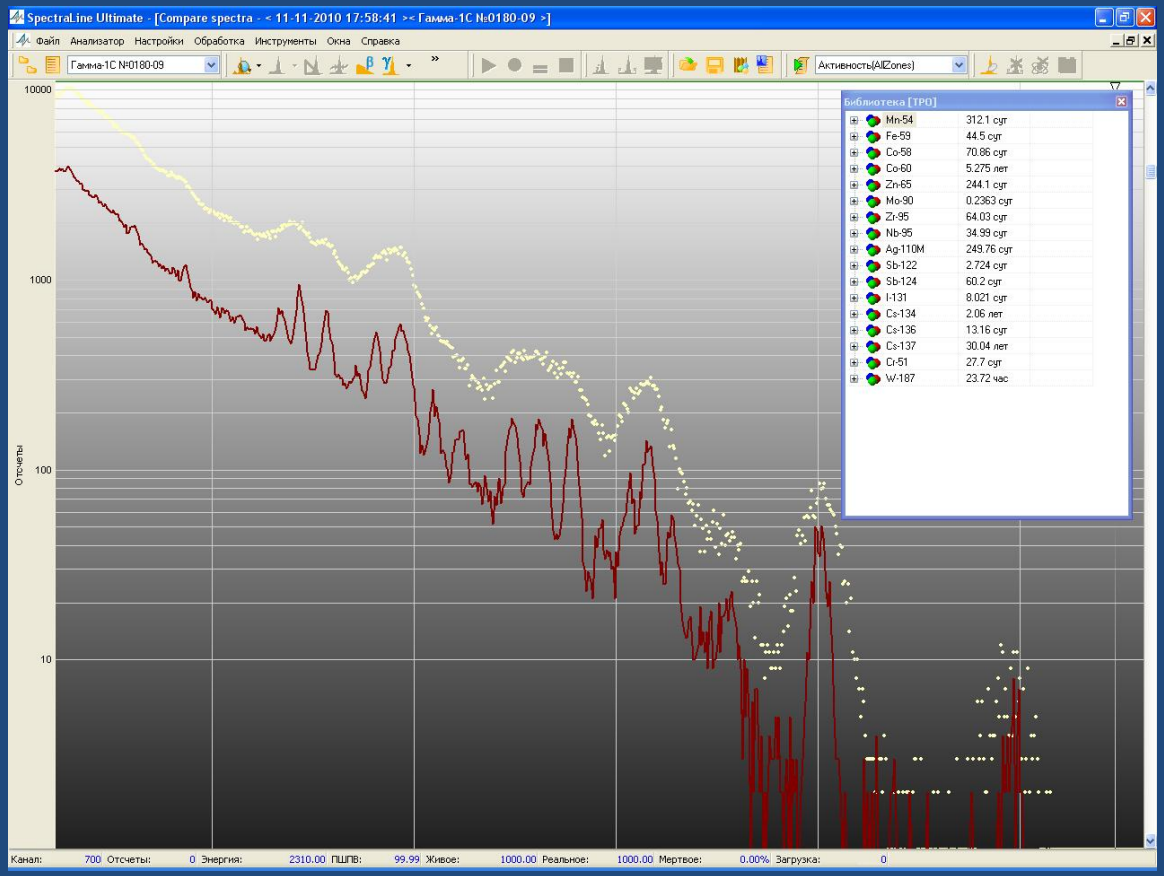
Поправки при расчете активности

«Истинные суммирования»



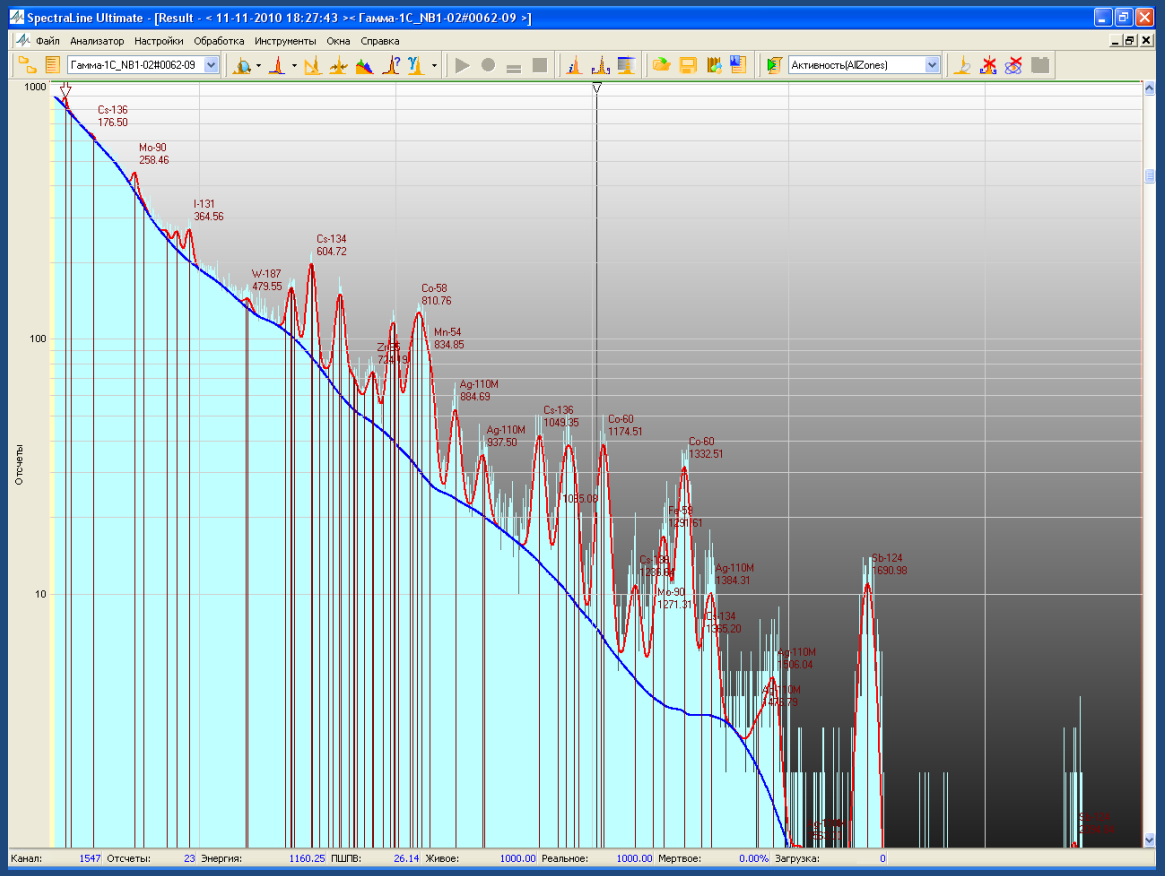
Паспортизация ЖРО

NaI



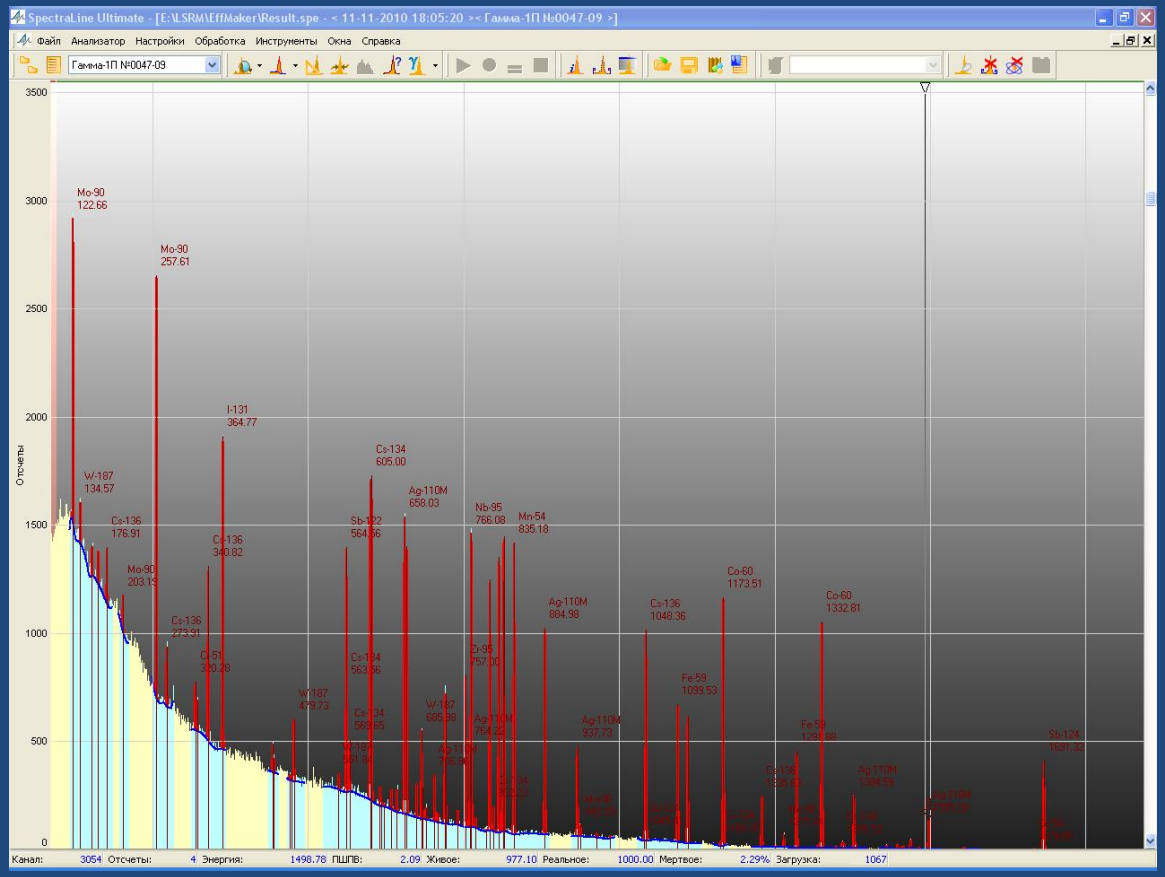
Паспортизация ЖРО

NaI



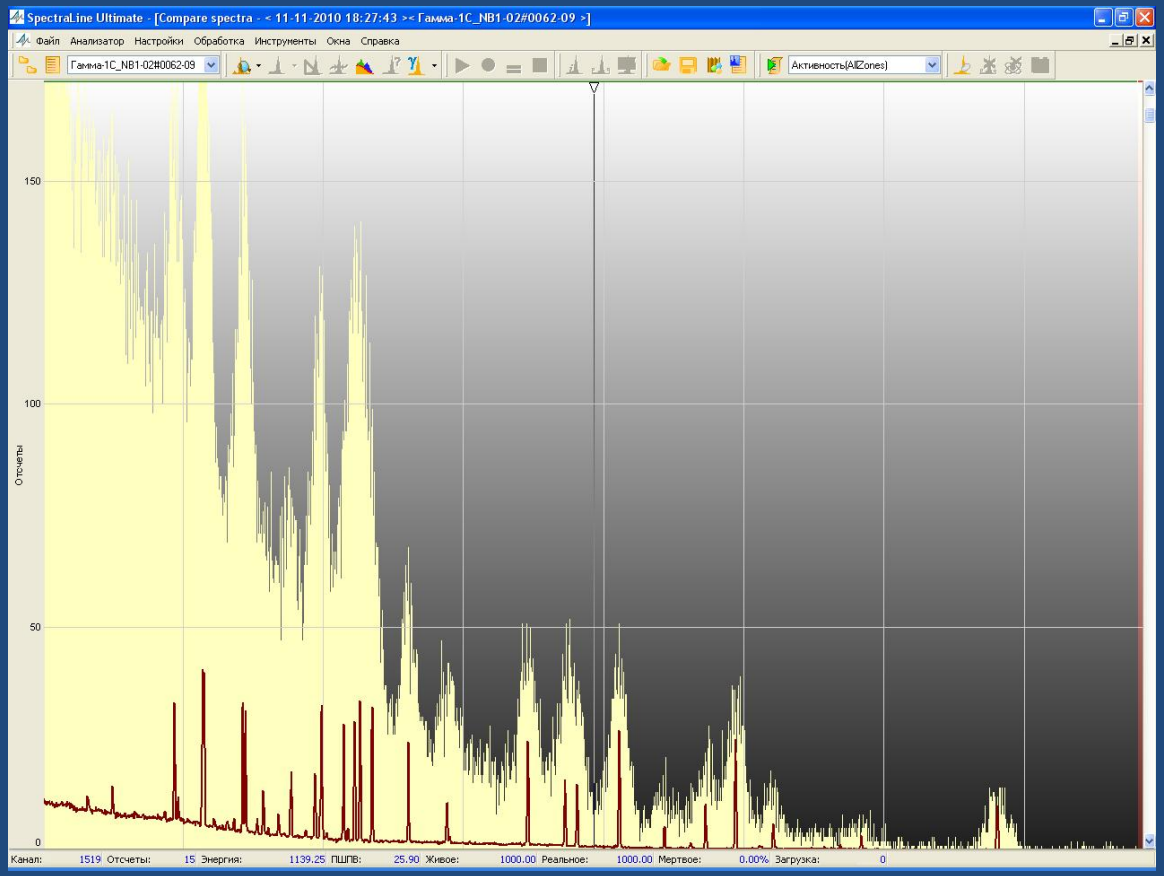
Паспортизация ЖРО

NaI

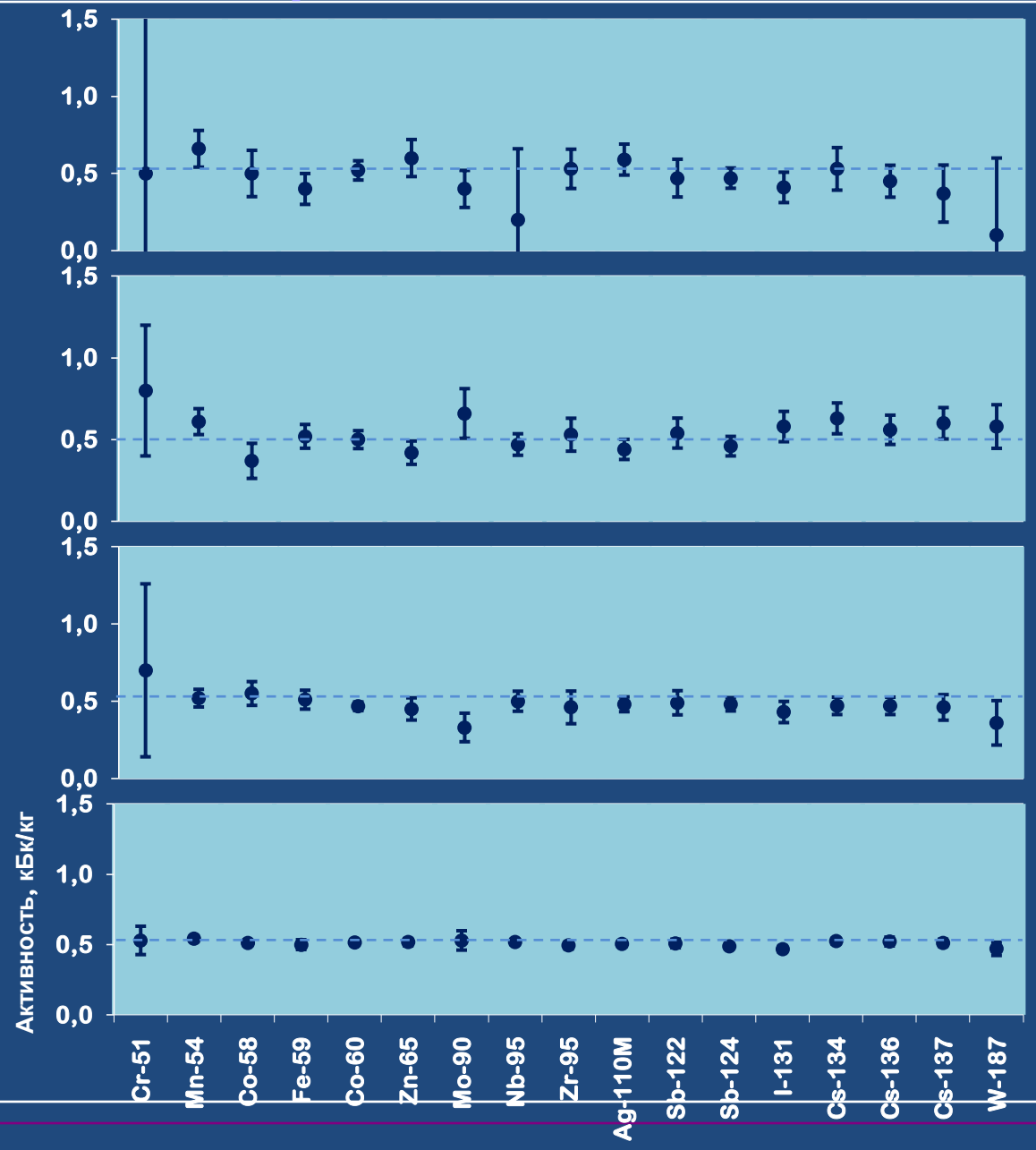


Паспортизация ЖРО

HPGe & $LaBr_3$



Паспортизация ЖРО – 500 Бк/кг каждого



NaI(63x63)
Fw=7.8%

NaI(63x63)
Fw=6%

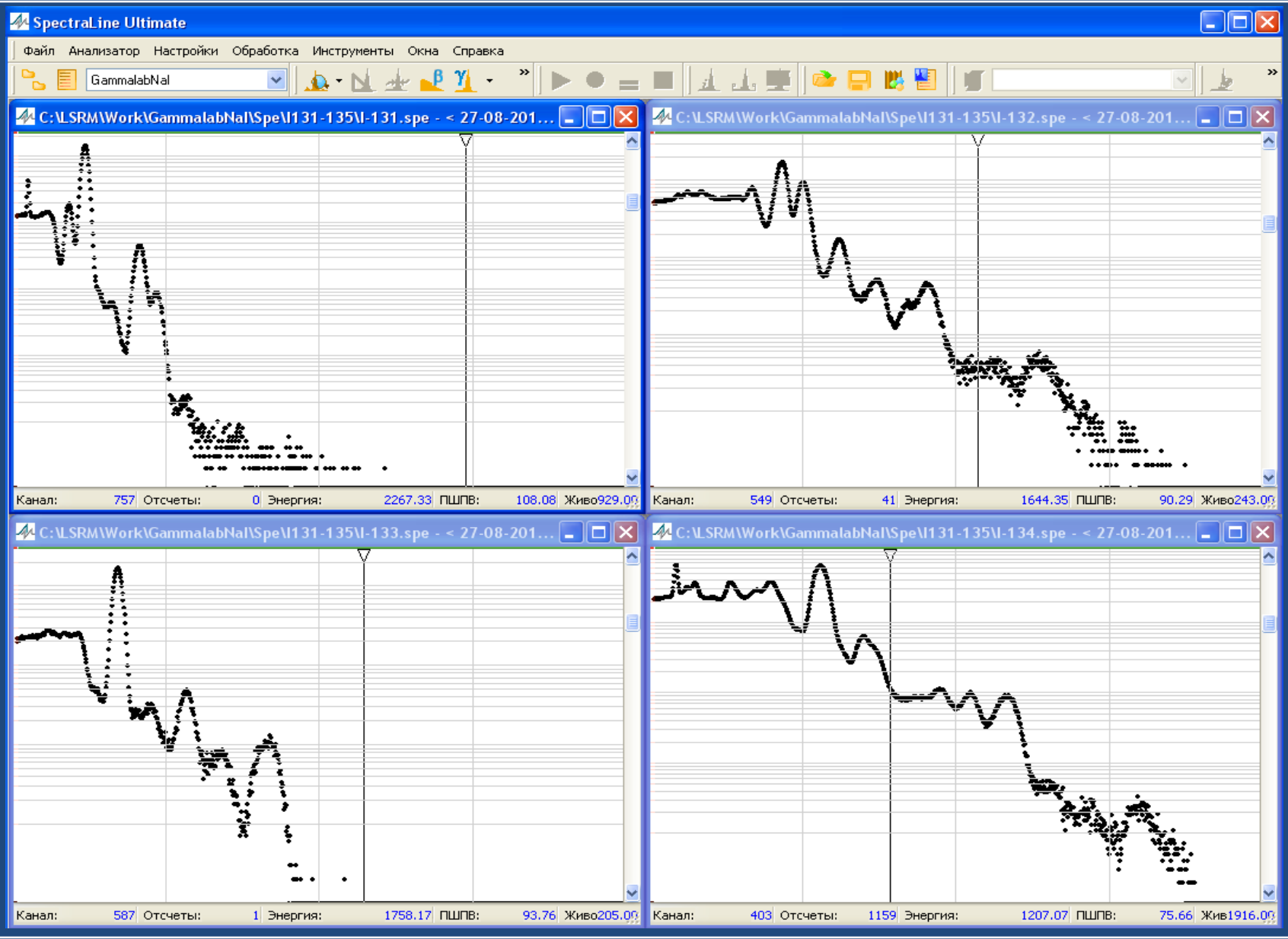
$LaBr_3$(38x38)
Fw=3%

HPGe(40%)
Fw=0.2%

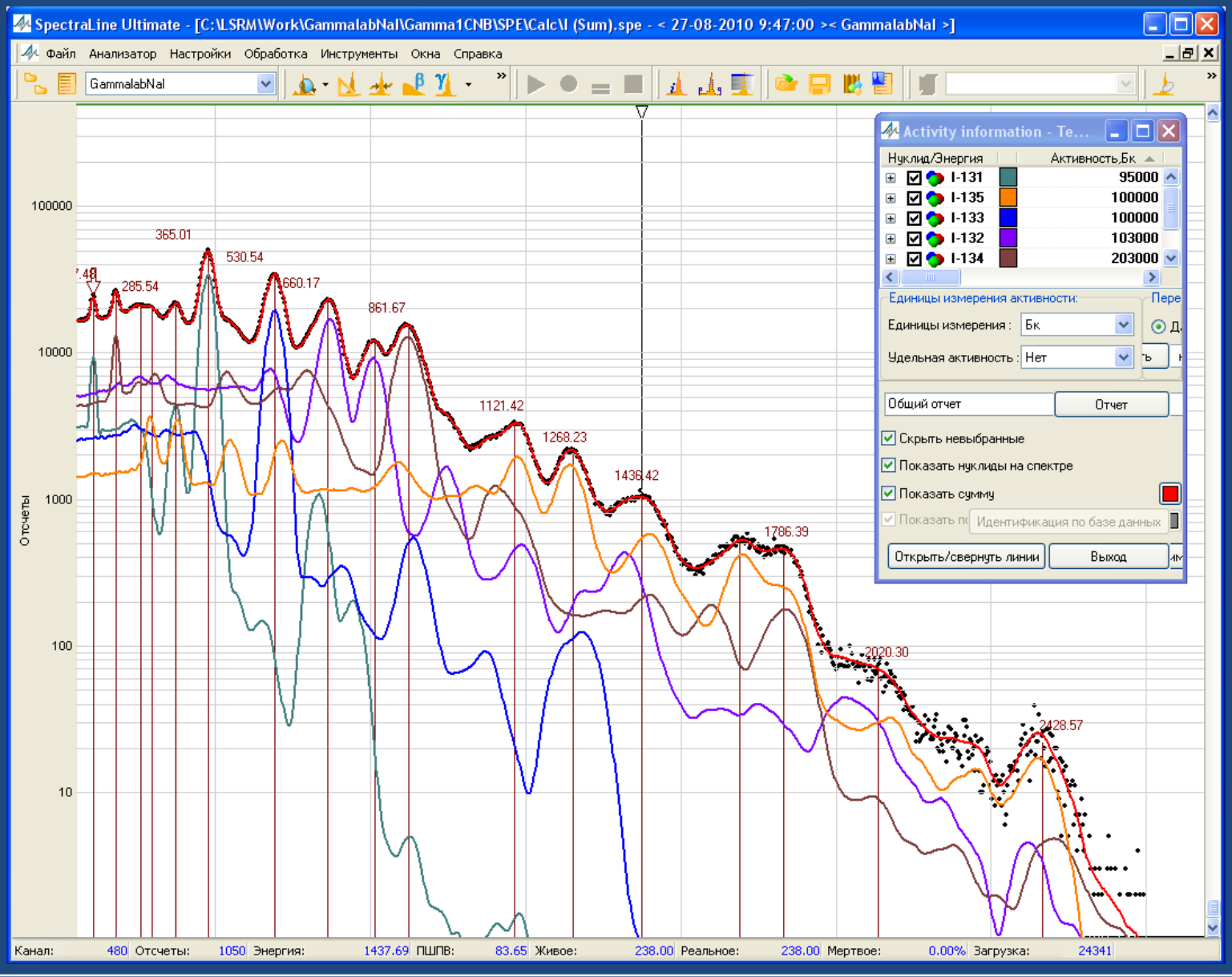
Другие применения GammaLab

- Калибровка аппаратуры
- Анализ целесообразности применения новых детектирующих устройств
- Разработка и тестирование программного обеспечения
- Разработка регламентов и методик выполнения измерений

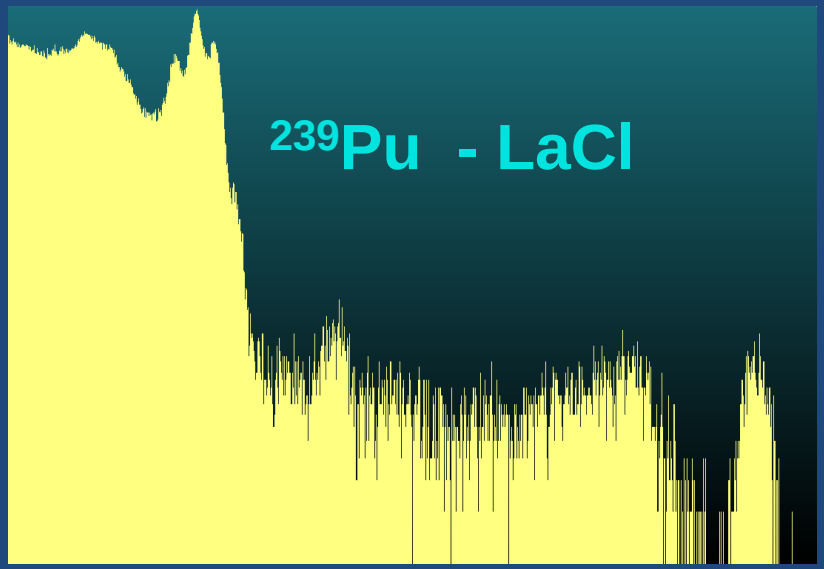
Спектры изотопов йода

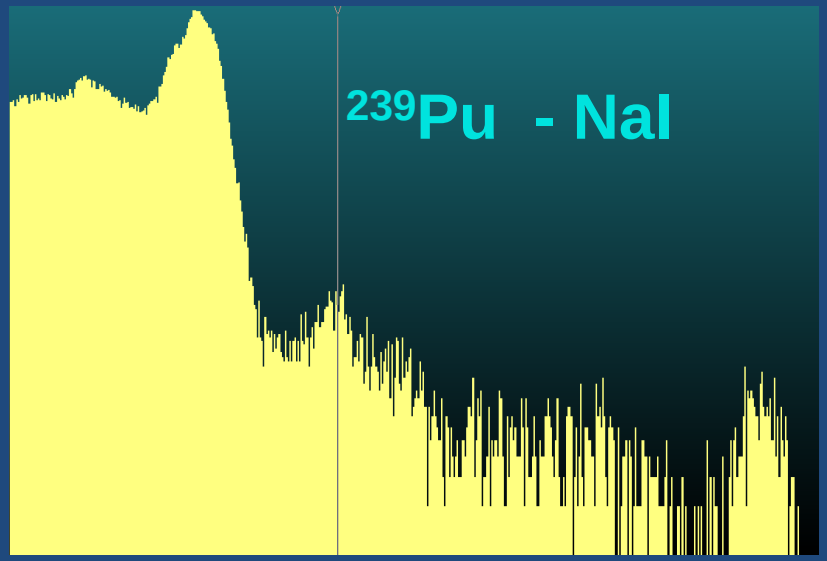


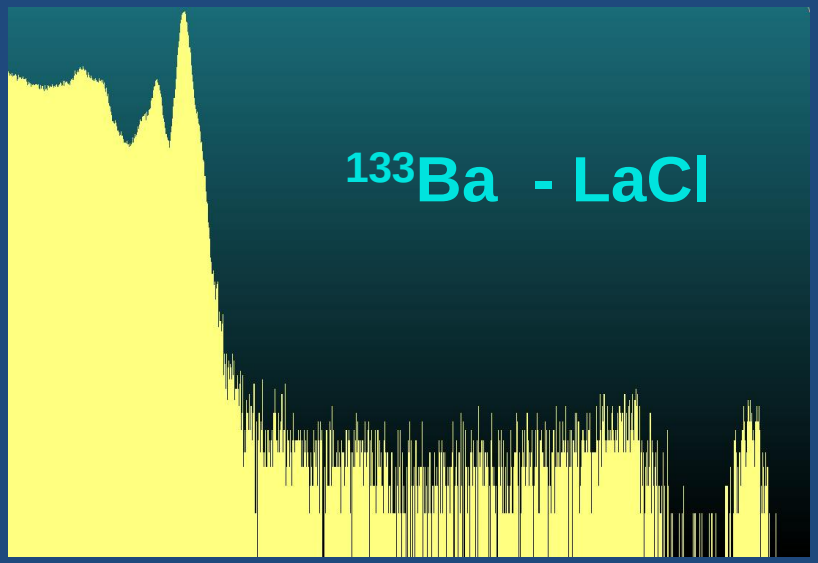
Результаты обработки смеси изотопов йода

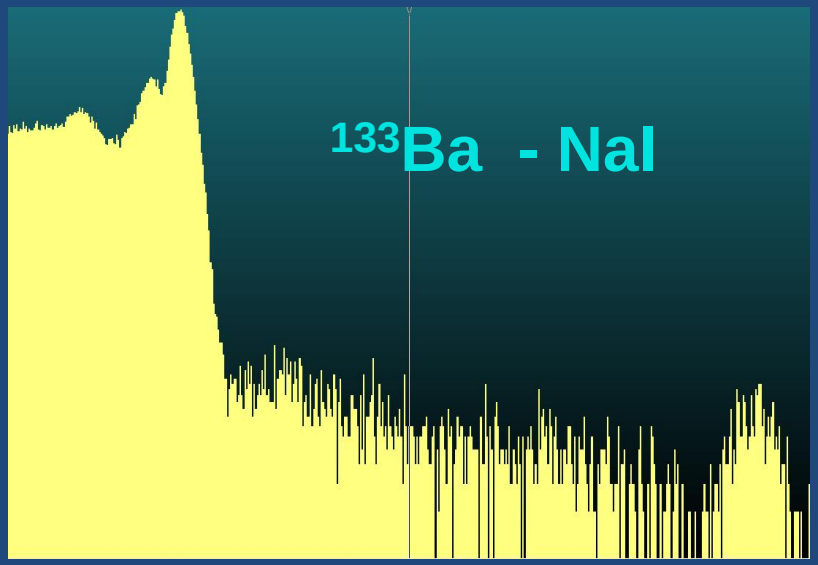


Детектор $LaCl_3$ и маскирование ^{239}Pu ^{133}Ba

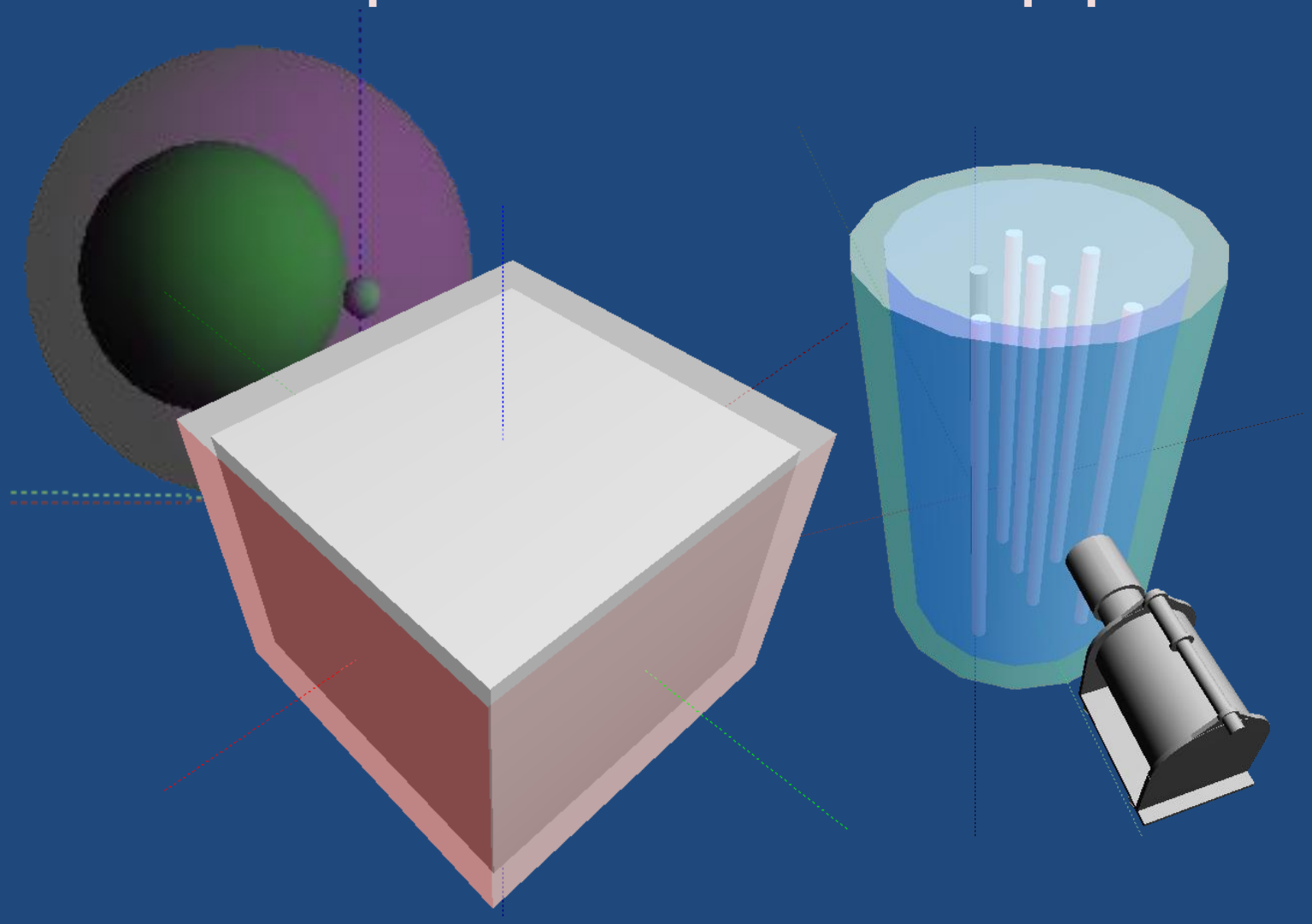








EffMaker – комплекс для расчета эффективности и гамма-спектров объектов сложной формы



GammaLab- виртуальная лаборатория

Разработка электронного тренажера эмулятора гамма-спектрометров для выработки практических навыков у офицеров ТКДРМ при таможенном контроле делящихся и радиоактивных материалов.

АСРМ