

Разработка усовершенствованного метода измерения активности промышленных источников бета-излучения и метода контроля однородности

Предложен усовершенствованный метод измерений активности источников бета-излучения на основе стронция-90 и метод контроля их однородности. Разработано необходимое аппаратное оснащение. Разработана математическая модель «эффективной толщины активного слоя», проведены расчеты с использованием программы PENELOPE. Для определения активности источников и визуализации однородности активного слоя разработано программное обеспечение. Проведено сравнение расчетных и экспериментальных данных.

**С.А.Пахомов, Т.Е.Кузьмина,
Е.В.Курьшева, В.В.Сидоров,
Г.В.Шахетов**

(АО «Радиевый институт им. В.Г. Хлопина»,
г. С.-Петербург)

Промышленные плоские источники бета-излучения типа BSr0.83 [1], выпускаемые в настоящее время в Радиевом институте, содержат матрицу из пористого графита размерами 26×26 мм и толщиной 1,5 мм (рис.1А), которая помещена в металлический корпус размерами 30×30×6 мм (рис.1В), имеющий окно из нержавеющей стали толщиной 50 мкм. Графитовая матрица насыщена радионуклидом Sr-90 и зафиксирована крышкой, снабженной плотно прилегающей к матрице подложкой (рис.1С). Готовые источники (рис.1D) герметизируют с использованием лазерной сварки. Типовое значение активности радионуклида ⁹⁰Sr в этих источниках составляет 20–40 мКи.

Ключевые слова:

радионуклидные источники, стронций-90, усовершенствованный метод измерения активности, программа PENELOPE, контроль однородности.

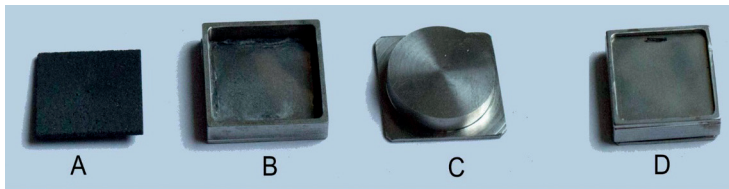


Рис.1. Устройство плоского прямоугольного источника бета-излучения типа BСr0.83.

Насыщение графитовой матрицы радионуклидом стронций-90 производят во фторопластовой ванночке, куда предварительно добавляют спирт, а затем, с помощью микродозатора, добавляют необходимое количество радиоактивного раствора. Графитовую матрицу, изготовленную из пористого графита (с пористостью 50%), помещают в подготовленную ванночку, после завершения пропитки и предварительного высушивания переносят на подложку из фторопласта, где окончательно высушивают под инфракрасной лампой.

Используемый метод насыщения графитовой матрицы активностью не всегда гарантирует однородности распределения радионуклида как по поверхности, так и по ее объему.

Толщина активного слоя источников BСr0.83 вместе с 50 мкм покрытием из нержавеющей стали составляет около 200 мг/см^2 , что значительно превышает предел применимости ГОСТ 26306-84 – основного документа, устанавливающего методы измерения основных радиационных параметров, закрытых радионуклидных источников бета-излучения – 25 мг/см^2 [2].

Вследствие этого техническими условиями для таких источников предусмотрен лишь один метод выходного контроля параметров – измерение мощности эквивалентной дозы с помощью дозиметра рентгеновского и гамма-излучения ДКС-АТ1121 на фиксированном расстоянии от источника. В паспорте источника указывается лишь предельное значение активности, основанное на значении удельной активности исходного радиоактивного раствора.

Таким образом, задача разработки новых, более точных методов определения характеристик промышленных радионуклидных источников остается актуальной и сегодня. К числу первоочередных задач относится повышение точности методов измерения активности этих источников и методов контроля их однородности.

Часто используемым при измерениях активности и спектральных характеристик высокоактивных бета-источников является метод ограниченного телесного угла [3], который позволяет уменьшить загрузку измерительного тракта до приемлемой величины. Общий вид установки ограниченного телесного угла показан на рис.2.

Источник помещается в вакуумный коллиматор, снабженный диафрагмой, ограничивающей телесный угол, под которым сцинтиллятор «видит» источник. Электроны, вылетающие из источника, свободно распространяются в вакууме (в пределах заданного телесного угла) и попадают в сцинтиллятор. Возникающие сцинтилляции регистрируются ФЭУ и анализируются АЦП. Полученные амплитудные спектры передаются в ПК для дальнейшей обработки.

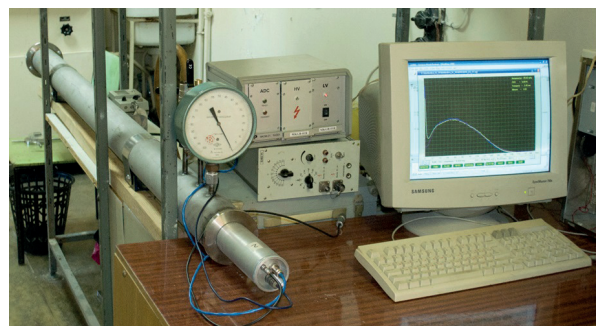


Рис.2. Общий вид установки ограниченного телесного угла.

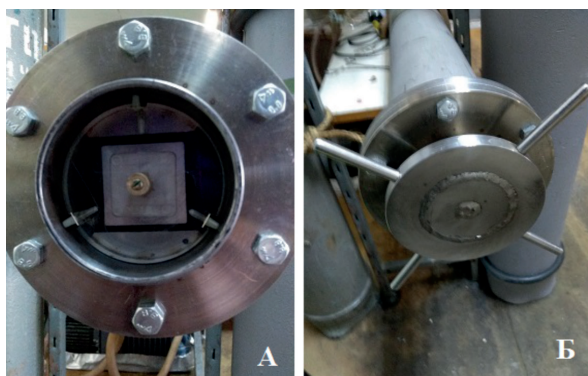


Рис.3. А – фиксация источника в коллиматоре. Б – герметизация коллиматора.

Вакуумный коллиматор изготовлен из стальной трубы (нержавеющая сталь марки 18Н10Х1Т) наружным диаметром 110 мм с толщиной стенок 3 мм. Длина вакуумной камеры вместе с фланцами составляет 2150 мм. Расстояние от активной поверхности источника до детектора (до поверхности сцинтиллятора) составляет 2100 мм. Диафрагма, изготовленная из нержавеющей стали толщиной 15 мм, имеет отверстие диаметром 10 мм и расположена на расстоянии 250 мм от детектора. В установке использован анализатор производства ООО «НТЦ «РАДЭК» и ФЭУ-143 производства АО «ЦНИИ ЭЛЕКТРОН».

Использован стандартный органический сцинтиллятор на основе полистирола с добавками 2,5-дифенилоксазола (РРО), 1,4-ди-(5-фенил-2-оксазол-ил)-бензола (РОРОР) производства ОИЯИ. Толщина сцинтиллятора составляет 10 мм. Необходимое разрежение (не более 1 мм. рт. ст.) обеспечивается вакуумным насосом НВР-4,5Д.

Фиксация источника в коллиматоре установки производится с помощью специальной оправки (рис.3А), герметизация коллиматора – с помощью винтовой крышки (рис.3Б).

С помощью описанной установки были измерены энергетические спектры 10-серийных источников бета-излучения ^{90}Sr с номинальной активностью 20 мКи. Полученные спектры представлены на рис.4. На рисунке видно, что формы спектров и их площади существенно различаются, тогда как их паспортные значения активности одинаковы. Это свидетельствует о неоднородности распределения активности в матрице источников (главным образом по ее толщине) и демонстрирует невозможность точного измерения активности относительным методом, т. к. изготовить идентичный эталон практически невозможно.

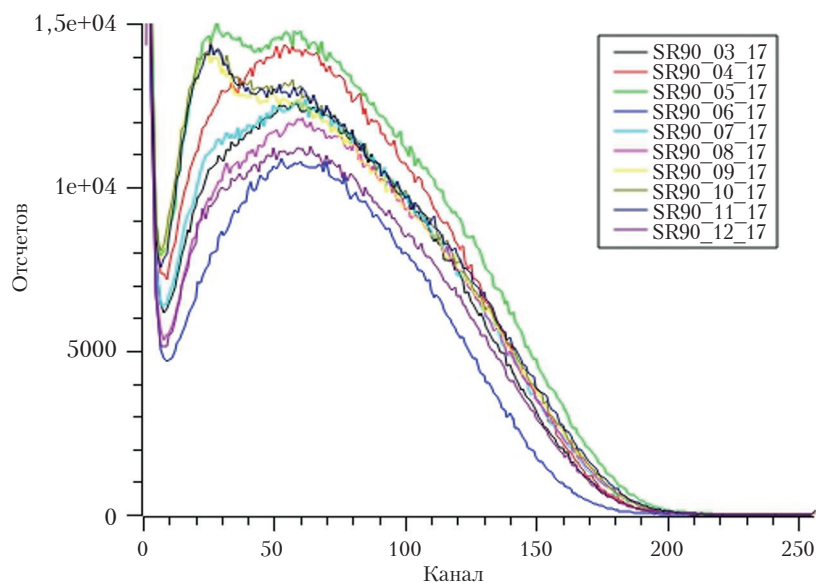


Рис.4. Энергетические спектры серийных источников бета-излучения стронция-90 с дочерним иттрием-90.

Для учета этой неоднородности и повышения точности результатов измерений активности была разработана математическая модель «эффективной толщины активного слоя», описывающая плоские источники бета-излучения, изготовленные на основе радионуклида стронций-90, находящегося в равновесии с дочерним иттрием-90.

В основу разработанной модели положено предположение, что в первом приближении неравномерность распределения активности

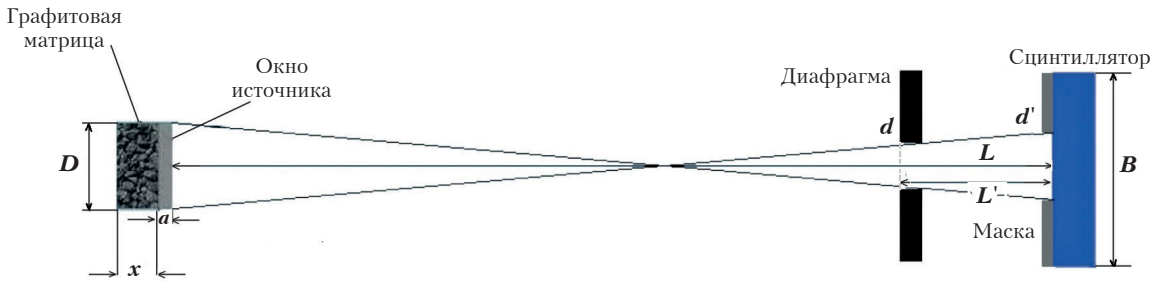


Рис.5. Геометрическая схема расчетной модели.

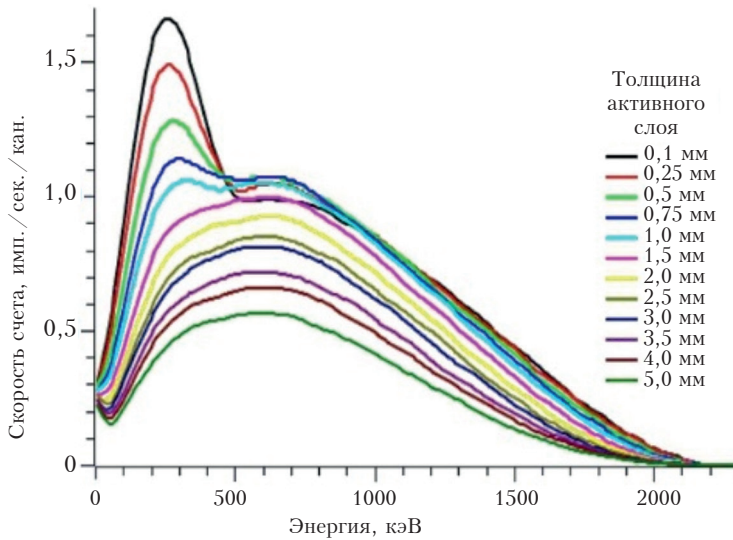


Рис.6. Результаты численного моделирования энергетических спектров источников с активным слоем на основе графита-50 толщиной от 0,1 до 5 мм.

в матрице источника можно учесть введением параметра «эффективная толщина активного слоя», в пределах которого распределение однородно. В этой модели реальный источник заменяется однородным по толщине, которая и выступает в качестве варьируемого параметра.

Табл.1. Значения параметров расчетной модели.

Параметр	Значение, мм
L	2100
L'	250
d	10
d'	11
B	51
D	30
a	0,05
x	0,1–5

Моделирование проводилось с использованием программы PENELOPE, основанной на методе Монте-Карло [4]. Геометрическая схема расчетной модели показана на рис.5. Дiskoобразный источник бета-частиц расположен на расстоянии L от поверхности сцинтиллятора. На расстоянии L' от сцинтиллятора расположена диафрагма диаметром d , а поверхность сцинтиллятора закрывает маска с диаметром окна d' , отсекающая вместе с диафрагмой рассеянные и вторичные

электроны. Диаметр источника D , толщина однородного активного слоя x (варьируемый параметр), толщина окна из нержавеющей стали a . Числовые значения перечисленных параметров приведены в табл.1.

В конструкции установки предусмотрены диафрагма и маска, отсекающие рассеянные и вторичные электроны, поэтому при расчете учитываются только первичные электроны, вылетающие из источника.

Телесный угол, под которым детектор «видит» источник, очень мал и составляет всего $2,3 \times 10^{-3}$ ср, что значительно уменьшает эффективность применения метода Монте-Карло. Поэтому расчеты были проведены для более выгодной геометрии: расстояние до источника $L = 1000$ мм, а эффективный

диаметр детектора $d' = 100$ мм, что обеспечило увеличение телесного угла до приемлемых значений (в 342 раза). Такая замена не сказывается существенно на результатах моделирования, т. к. даже при наибольшем угле рассеяния путь, проходимый электроном в источнике, увеличивается менее чем на 0,02% по сравнению с исходной геометрией. Полученные результаты моделирования в дальнейшем были уменьшены в соответствующее число раз.

С использованием программы PENELOPE было проведено моделирование функции отклика детектора для различной толщины активного слоя (в диапазоне от 0,1 до 5 мм) для источника с активностью 1 мКи. Количество историй в каждом расчете составляло не менее 5×10^8 . Результаты моделирования представлены на рис.6 в виде семейства кривых, отвечающих различным значениям толщины.

Как видим, формы энергетических спектров бета-частиц, а также их площади (определяющие эффективность) существенно изменяются с увеличением толщины активного слоя источника: формы спектров становятся более гладкими, низкоэнергетический «горб», обусловленный вкладом стронция-90, исчезает, а площади спектров уменьшаются. Таким образом, аппаратная форма бета-спектра источника может выступать параметром, характеризующим величину эффективности регистрации его бета-излучения.

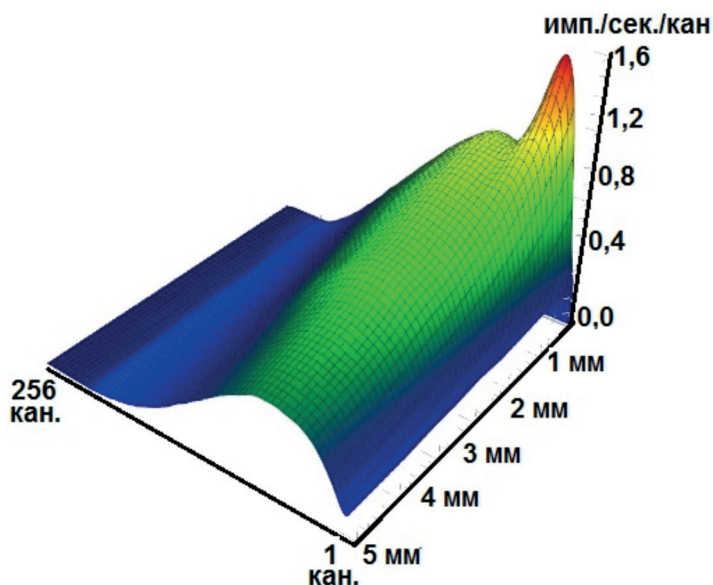


Рис.7. Результаты моделирования формы спектров с помощью PENELOPE, представленные в виде трехмерной поверхности.

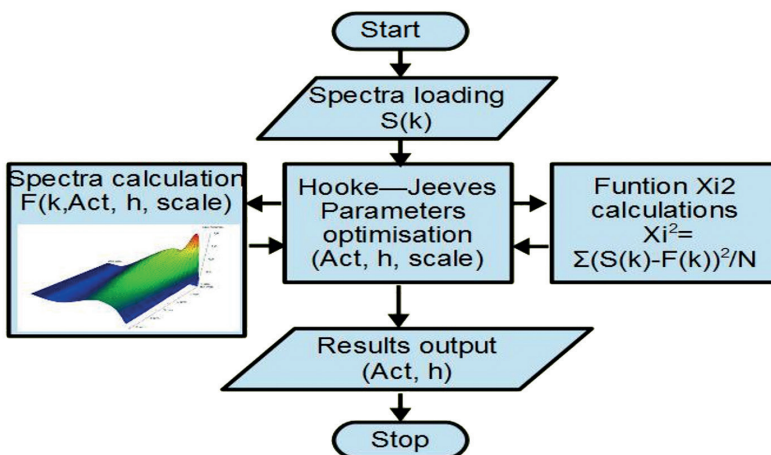


Рис.8. Блок-схема программы обработки бета-спектров с использованием модели эффективной толщины активного слоя.

На рис.7 результаты моделирования представлены в виде 3D поверхности, полученной с использованием сплайн-интерполяции и сглаживания [5].

Массив этих данных был использован при разработке программного модуля, отвечающего за вычисление теоретического спектра источника в зависимости от толщины активного слоя, используемого в разработанной нами программе обработки измеренных спектров.

Алгоритм программы обработки измеренных спектров основан на подгонке формы теоретического спектра к форме экспериментального с использованием в качестве подгоночного параметра толщины активного слоя. Предполагается, что при совпадении форм этих спектров рассчитанное программой PENELOPE значение эффективности регистрации близко к реальному значению, характеризующему измеренный источник. Блок-схема этой программы показана на рис.8.

В основе программы лежит алгоритм многомерной оптимизации модельных параметров Хука-Дживса [6]. Подгоночными параметрами (кроме толщины активного слоя) являются активность источника и масштабирующий множитель, согласующий положение измеренного и расчетного спектров на энергетической шкале. По завершении процесса оптимизации значение параметра активности является оценкой активности измеренного источника. Программа была разработана в среде программирования Compaq Visual Fortran [7].

На рис.9 и 10 показаны результаты обработки спектров, полученных при измерении двух однотипных источников с одинаковой номинальной активностью 25 мКи. Исходные спектры показаны красным цветом, расчетные спектры желтым. Как видно, предложенная модель хорошо описывает экспериментальные данные, значение среднего отклонения, рассчитанного для измеренного и модельного спектров, составляет всего 3%. Оцененное значение активности источника SR90_03_17 (рис.9) составляет 25,7 мКи (при скорости счета $2,65 \cdot 10^3$ имп/с), а источника SR90_06_17 (рис.10) – 24,6 мКи (при скорости счета $3,37 \cdot 10^3$ имп/с). Таким образом, потоки бета-частиц от этих источников (а значит и эффективности) различаются на 23%, а значения активности различаются всего на 4,4%. Полученный результат наглядно иллюстрирует работоспособность предложенной

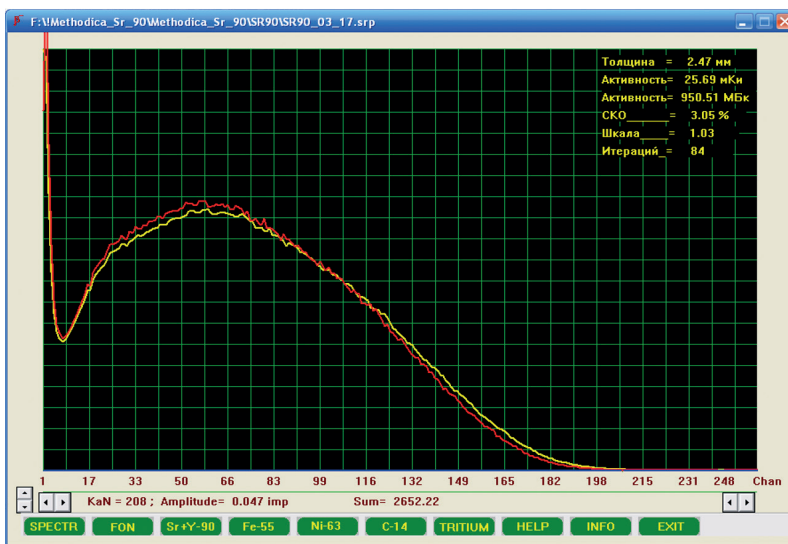


Рис.9. Результаты обработки спектра источника SR90_03_17.

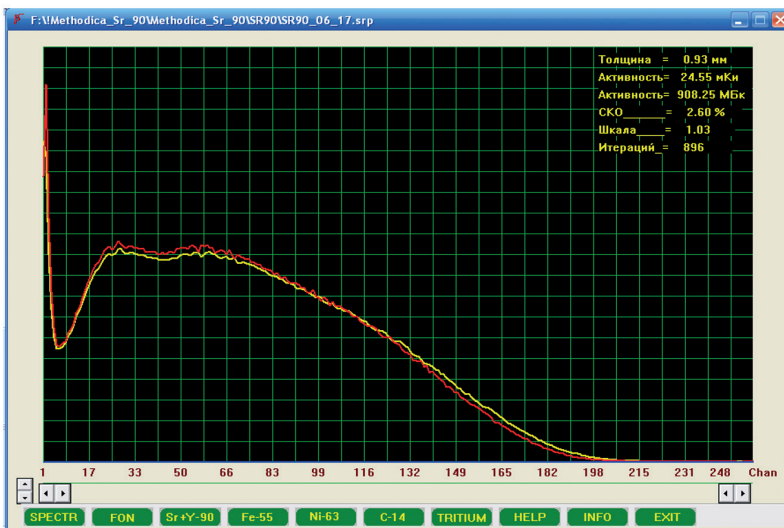


Рис.10. Результаты обработки спектра источника SR90_06_17.

Табл.2. Результаты обработки спектров по модели «эффективной толщины активного слоя».

№ п/п	Источник	Активность, мКи	Толщина активного слоя, мм
1	SR90-03-17	25,5	2,45
2	SR90-04-17	24,9	1,62
3	SR90-06-17	24,4	0,91
4	SR90-07-17	27,1	4
5	SR90-08-17	21,6	1,43
6	SR90-09-17	22,3	1,86
7	SR90-10-17	19,1	0,6
8	SR90-11-17	20,5	0,63
9	SR90-12-17	20,6	0,65
10	SR90-13-17	20,5	1,92
11	SR90-14-17	25,2	2,8
12	SR90-15-17	26,8	2,5
13	SR90-16-17	26,1	2,79
14	SR90-17-17	26,3	2,61
15	SR90-18-17	53,1	2,5
16	SR90-19-17	44,3	0,73
17	SR90-20-17	47,5	1,85
18	SR90-21-17	44,8	1
19	SR90-22-17	41,1	0,93
20	SR90-23-17	26,3	2,92
21	SR90-24-17	20,7	0,79
22	SR90-25-17	25,7	2,9
23	SR90-26-17	20,6	0,91
24	SR90-27-17	21,1	0,71

нами модели «эффективной толщины активного слоя» и разработанного алгоритма обработки спектров.

В табл.2 представлены результаты обработки спектров по модели «эффективной толщины активного слоя», измеренных для партии из 24 источников. Часть источников изготавливалась с номинальным значением активности 25 мКи, а другая часть – 50 мКи.

По данным табл.2 на рис.11 для партии из 24 источников представлены частотные гистограммы распределения оцененных значений активности и эффективной толщины активного слоя.

На гистограмме распределения активностей видны две группы источников: с активностями,

заключенными в диапазоне 20–30 мКи, и заключенными в диапазоне 40–55 мКи, что соответствует, в пределах разброса, целевым значениям активности этих источников, заложенным при их производстве (25 и 50 мКи).

На гистограмме распределения толщин также видны две группы эффективных значений толщин: заключенных в диапазоне 0,5–2 мм и в диапазоне 2,5–3 мм, что, по-видимому, соответствует «прямому» и «перевернутому» размещению активной матрицы в корпусе источника, когда наиболее насыщенная радионуклидами сторона прилегает либо к окну источника, либо к основанию корпуса. Действительно, задача обязательного размещения графитовой матрицы, насыщенной радионуклидом, в корпусе источника одинаковым обра-

зом, с сохранением ее ориентации, ранее не ставилась, т. к. не было сомнения в однородности ее пропитки радиоактивным раствором.

Таким образом, предложенная модель «эффективной толщины активного слоя» и разработанный на ее основе алгоритм обработки энергетических спектров, испускаемых радионуклидными источниками бета-частиц на основе стронция-90 и равновесного дочернего иттрия-90, работоспособны, и их применение позволяет контролировать технологию изготовления источников и уточнять значение его активности. На основе предложенной модели и алгоритма может быть разработан абсолютный метод измерения активности серийно выпускаемых радионуклидных источников

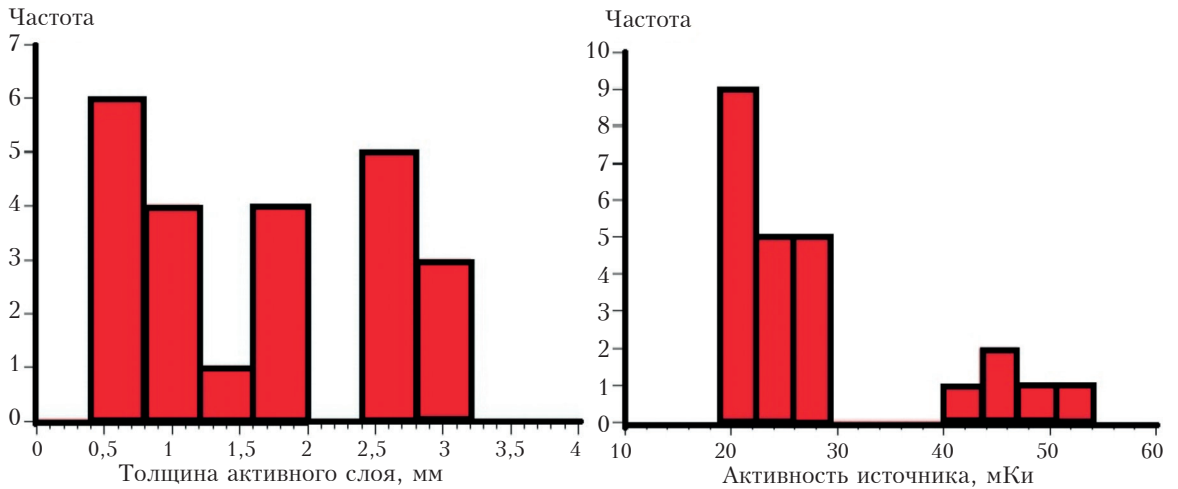


Рис.11. Частотные гистограммы распределения оцененных значений активности и эффективной толщины активного слоя.

бета-излучения, изготовленных на основе радионуклида стронция-90 в равновесии с дочерним иттрием-90. Метод применим не только к источникам $BSr0.83$, но и ко многим другим ($BSr0.1$, $BSr02$, $BSr072$ и др.), имеющим плоскую геометрию. Также метод может быть адаптирован к измерениям источников, изготовленным на основе других бета-излучающих радионуклидов (никель-63, углерод-14, криптон-85 и др.).

Другой важной задачей выходного контроля при производстве промышленных радионуклидных источников бета-излучения является контроль однородности распределения радионуклида по поверхности активного слоя источника. Для решения этой задачи было разработано измерительное устройство, реализующее метод компьютерной авторадииграфии [8] с использованием в качестве видеоустройства веб-камеры Logitech Webcam 200, в которой в качестве приемника изображения используется КМОП матрица с разрешением 640×480 пикселей. Структурная схема и общий вид этого устройства показаны на рис.12.

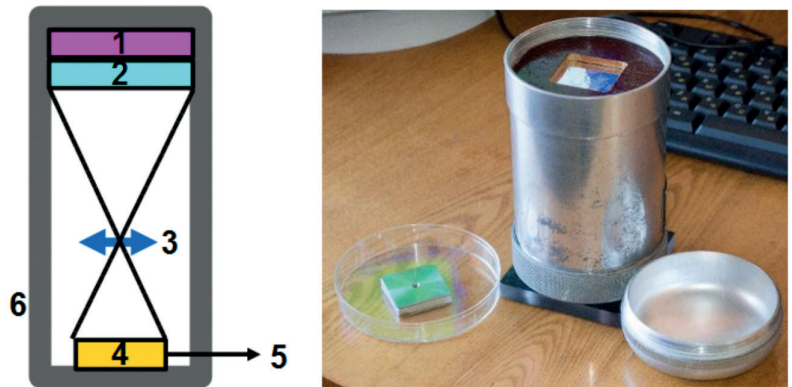


Рис.12. Структурная схема и общий вид устройства авторадииграфии. 1 – источник излучения, 2 – сцинтиллятор (CsI), 3 – оптическая линза, 4 – КМОП-матрица, 5 – выход ПК, 6 – защитный корпус.

Полученное изображение передается на ПК в 24-битном формате BMP (Bitmap Picture) и обрабатывается специальной программой. Программа считывает байты, содержащие информацию о яркости цветов (красного, зеленого и синего – R, G, B) каждого пикселя изображения и производит их суммирование. Далее программа анализирует полученные значения суммарной яркости пикселей (R+G+B) и строит изображение поверхности в условных цветах, соответствующих яркости участков сцинтиллятора, пропорциональной потоку бета-частиц с поверхности источника. Далее программа строит гистограмму частотного

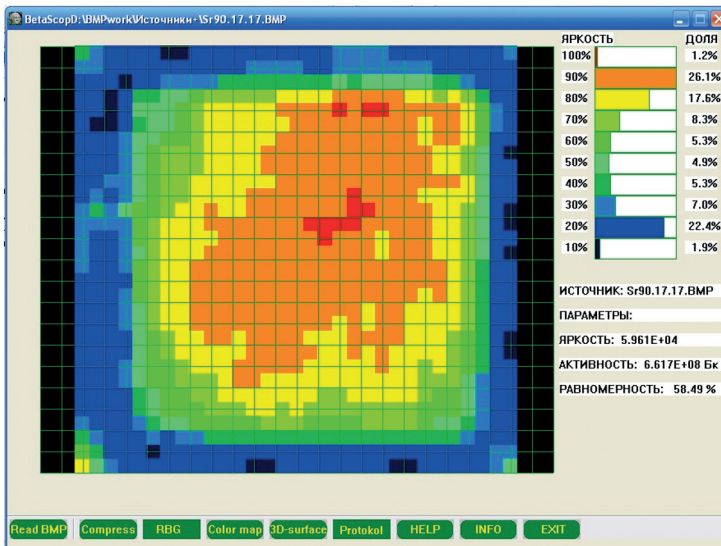


Рис.13. Оценка однородности активного слоя источника SR90_17_17.

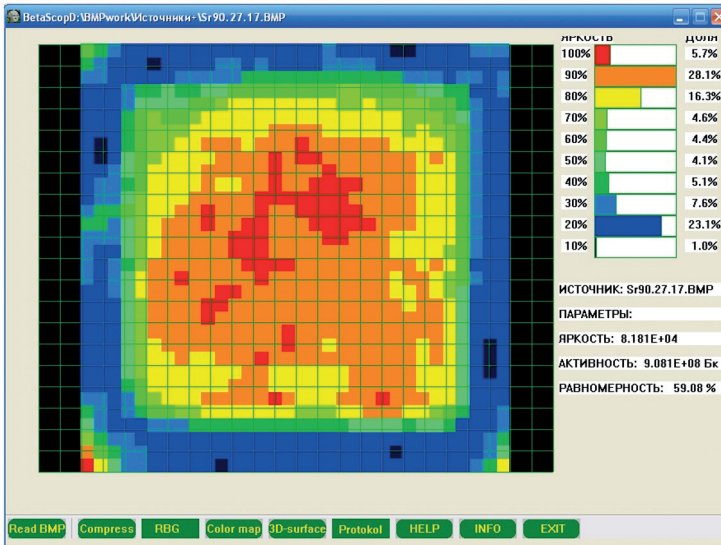


Рис.14. Оценка однородности активного слоя источника SR90_27_17.

распределения значений яркости и производит числовую оценку поверхностной однородности насыщения активного слоя источника радионуклидом. За меру однородности принимается доля пикселей, зарегистрировавших наибольшую яркость радиографического изображения источника (условно принято, с яркостью более 50% от максимальной).

распределение дозы по поверхности облучаемого объекта. Разработанное устройство для проведения компьютерной автордиографии источников с использованием в качестве видеоустройства веб-камеры по степени завершенности является лишь лабораторной моделью. Тем не менее, полученные результаты убедительно показывают необходимость создания специализированных устройств для контроля однородности высокоактивных промышленных источников.

Пример работы программы представлен на рис.13 и 14, где показано окно программы после обработки автордиографического изображения источников SR90_27_17 и SR90_17_17.

Как видно, наиболее насыщенные радионуклидом участки активного слоя расположены в центре источника (красные и коричневые цвета). Ближе к периферии насыщенность уменьшается (желтые и зеленые цвета). Числовая оценка поверхностной однородности активного слоя источника SR90_17_17 имеет значение 56,5%, а источника SR90_27_17 – 59,1%.

Показатель однородности распределения радионуклида по поверхности активного слоя промышленных источников очень важен для целого ряда их применений: в биологии, медицине, технологии полупроводников и других областях, где критическим является равномерное

Литература

1. Каталог радионуклидной продукции научного дивизиона Госкорпорации «Росатом»: рекламное издание. Димитровград: АО «ГНЦ НИИАР», 2022. С. 55.
2. ГОСТ 26306-84. Источники бета-излучения радионуклидные закрытые. Методы измерения параметров.
3. ГОСТ 15484-81. Излучения ионизирующие и их измерения. Термины и определения.
4. Francese Salvat. PENELOPE-2014 A Code System for Monte Carlo Simulation of Electron and Photon Transport. NEA/NSC/DOC(2015)3. Workshop Barcelona, Spain 29 June-3 July 2015. <https://www.oecd-nea.org/upload/docs/application/pdf/2020-01/nsc-doc2015-3.pdf> (дата обращения: 04.03.2024).
5. Василенко В.А. Сплайн-функции: теория, алгоритмы, программы. Новосибирск: Наука, 1983. 215 с.
6. Хук Р., Дживс Т.А. Прямой поиск решения для числовых и статических проблем, 1961 С. 212-219.
7. Бартедьев О.В. VISUAL FORTRAN: новые возможности. Издание третье, дополненное и переработанное. М.: Диалог МИФИ, 2000. 450 с.
8. V. Loraine Upham, F. David Englert. *Radionuclide Imaging Handbook of Radioactivity Analysis* (Second Edition), 2003.

Development of the Improved Method for Measuring the Activity of Industrial Beta Radiation Sources and Method for Homogeneity Control

Pakhomov Sergey, Kuzmina Tatyana, Kurysheva Ekaterina, Sidorov Victor, Shakhmetov Gennadiy
(JSC Khlopin Radium Institute, St. Petersburg, Russia)

Abstract. An improved method for measuring the activity of strontium-90-based beta radiation sources and a method for monitoring their homogeneity are proposed. The necessary hardware was developed. A mathematical model of the «effective thickness of the active layer» was developed and calculations was carried out using the PENELOPE program. Software to determine the activity of sources and visualize the homogeneity of the active layer was developed. A comparison of calculated and experimental data was carried out.

Key words: *radionuclide sources, strontium-90, improved method for measuring activity, PENELOPE program, homogeneity control.*

С.А.Пахомов (к.т.н., вед.инж.), Т.Е.Кузьмина (нач.отд.),

Е.В.Курьшева (нач.лаб.), В.В.Сидоров (вед.инж.), Г.В.Шахметов (нач.лаб.) – АО «Радиевый институт им. В.Г. Хлопина», г. С.-Петербург

Контакты: тел. +7 (812) 346-90-29, e-mail: pakhomov@khlopin.ru