

О возможностях использования альфа-бета-радиометра УМФ-2000 с программным обеспечением «SpDec» для спектрометрических измерений

Описан опыт эксплуатации α - β -радиометра УМФ-2000 с программным обеспечением «SpDec» в спектрометрическом режиме. Выполненная по 18 изотопам градуировка по энергии для α -излучателей имеет линейный характер, тогда как градуировка по энергии для β -излучателей, выполненная по 8 изотопам, плохо аппроксимируется прямой. Описаны ограничения в идентификации α -излучателей, связанные с низким разрешением спектров, эманацией радона из источников и разницей в толщине источников. Проведена апробация на природных пробах воды с повышенным содержанием урана.

**В.С. Семенищев, А.С. Космычев,
Е.И. Денисов**

(Уральский федеральный университет имени первого Президента России Б.Н. Ельцина, г. Екатеринбург)

Полупроводниковый альфа-бета-радиометр УМФ-2000, заменивший в 1990-х гг. предшествующие аналоги УМФ-1500М и УМФ-3, является одним из самых популярных в России приборов в своем классе. Основной областью применения УМФ-2000 является измерение активности альфа- и бета-излучателей и, в частности, определение суммарной альфа- и бета-активности проб почвы, воды, воздушных фильтров и т. д. [1]. Очевидным недостатком такого варианта измерений является полное отсутствие данных о радионуклидном составе измеряемых проб, поэтому в начале 2000-х гг. УМФ-2000 был дооснащен аналогово-цифровым преобразователем и программным обеспечением «SpectraDec», которые позволили использовать прибор в спектрометрическом режиме [2,3]. Фактически, в модернизированном виде УМФ-2000 представляет собой

Ключевые слова:

УМФ-2000, альфа-спектрометрия, энергетическая градуировка, определение радионуклидов.

1024-канальный альфа-бета-спектрометр без вакуумной камеры. В нашей лаборатории такой комплекс с детектором 1000 мм² эксплуатируется с 2022 года. Одной из особенностей программы «SpDec» является отсутствие энергетической калибровки прибора. В связи с этим была поставлена задача ручной энергетической калибровки спектрометрического комплекса. Для этого было необходимо изменить тонкие источники с известным радионуклидным составом, в качестве которых были взяты заводские ОСГИ и ОСАИ; кроме того,

часть источников были приготовлены самостоятельно. В табл.1 и 2 приведены все изотопы и их характеристики, измеренные при помощи ПО «SpDec» на радиометре. Все энергии излучений были взяты из интерактивной карты нуклидов МАГАТЭ [4].

Все полученные альфа-спектры были обработаны, и по ним была построена градуировочная зависимость по энергии (рис.1). Как видно на рис.1, график хорошо аппроксимируется линейной зависимостью в диапазоне энергий альфа-излучения от 4 до 7,4 МэВ,

Табл.1. Радионуклидные альфа-излучающие источники, использованные для энергетической калибровки УМФ-2000.

Радионуклид	Период полураспада	Энергия альфа-частиц, МэВ	Примечание
U-238	4,47·10 ⁹ лет	4,2 (79%) 4,15 (21%)	Приготовлен из раствора электроосаждением на стальной диск
U-234	2,46·10 ⁵ лет	4,78 (71,38%) 4,72 (28,49%)	
Pu-238	87,70 лет	5,5 (70%) 5,45 (28,98%)	Заводской ОСАИ
Pu-239	2,41·10 ⁴ лет	5,16 (70,77%) 5,14 (17,11%)	Заводской ОСАИ
Pu-240	6564 лет	5,17 (72,76%) 5,12 (27,14%)	Заводской ОСАИ
U-233	159200 лет	4,8 (84,3%) 4,78 (13,2%)	Приготовлен из образцового раствора радионуклидов (ОРР) электроосаждением на стальной диск
Po-210	3,10 мин	5,3 (100%)	Приготовлен из раствора автоосаждением на серебряный диск
Ra-224	3,66 суток	5,69 (94,92%) 5,45 (5,06%)	Приготовлен сорбцией из раствора Th-232 на пленке MnO ₂ -ПЭ
Rn-220	55,60 с	6,29 (99,89%)	
Po-216	0,145 с	6,78 (99,99%)	Дочерние от Ra-224
Ra-223	11,44 дня	5,72 (51,2%) 5,6 (25%)	Приготовлен сорбцией на пленке MnO ₂ -ПЭ из элюата радионуклидного генератора на основе Ac-227
Rn-219	3,96 с	6,82 (79,4%) 6,4 (7,5%)	Дочерние от Ra-223
Po-215	1,781·10 ⁻³ с	7,39 (99,99%)	
Bi-211	2,14 мин	6,62 (83,54%) 6,28 (6,19%)	
Th-232	1,41·10 ¹⁰ лет	4,01 (78,2%), 3,95 (21,7%)	Приготовлен из раствора электроосаждением на стальной диск
Th-230	75380 лет	4,69 (76,3%) 4,62 (23,4%)	Приготовлен сорбцией из раствора скандиевого концентрата на пленке MnO ₂ -ТАЦ
Am-241	432,2 года	5,49 (84,8%) 5,44 (13,1%)	Приготовлен сорбцией из ОРР на пленке MnO ₂ -ТАЦ
Cm-243	29,1 лет	5,78 (73%) 5,99 (5,68%)	Приготовлен сорбцией из раствора ОРИ на пленке MnO ₂ -ТАЦ

Табл. 2. Радионуклидные бета-излучающие источники, использованные для энергетической калибровки УМФ-2000М.

Радионуклид	Период полураспада	Максимальная энергия бета-частиц, МэВ	Примечание
Na-22	2,60 года	0,54	Заводской ОСГИ
Co-60	5,27 года	0,318	Заводской ОСГИ
Sr-90/Y-90	28,8 года	0,5/2,27	Приготовлен выпариванием раствора ОРР на кювете
Ba-133	10,51 года	0,08 (85,4%), 0,13 (14,5%)	Заводской ОСГИ
Cs-137	30,17 лет	0,51 (94%), 1,18 (5,3%)	Заводской ОСГИ
Cs-137	30,17 лет	0,51 (94%), 1,18 (5,3%)	Приготовлен выпариванием раствора ОРР на кювете
Eu-152	13,52 лет	0,72	Заводской ОСГИ
Tl-204	3,56 года	0,76	Приготовлен выпариванием раствора ОРР на кювете
Bi-207	32,90 лет	0,8	Приготовлен сорбцией из раствора на пленке CdS-ПЭ

при этом коэффициент корреляции линейной обработки составил $R^2 = 0,9784$. Таким образом, было показано, что УМФ-2000 в спектротрическом режиме может быть отградуирован по энергии для альфа-излучателей и использован для их качественной идентификации.

При построении градуировочной зависимости для бета-излучателей брали высокоэнергетический край бета-спектра. Как можно заметить из рис.2, градуировочная зависимость для бета-излучателей слабо поддается линейной аппроксимации, $R^2 = 0,4114$. Это связано как с некоторой неопределенностью находде-

ния края бета-спектра, особенно при небольших активностях образца, так и с небольшим диапазоном каналов – от 56 до 115 при диапазоне E_{max} от 0,318 до 2,27 МэВ. Таким образом, использование УМФ-2000 со спектротрическим комплексом для качественной идентификации бета-излучателей представляется нецелесообразным.

Как можно видеть из рис.3, в случае измерения качественных тонкослойных спектротрических источников качественная идентификация альфа-излучателей не вызывает проблем как при наличии одного радионуклида

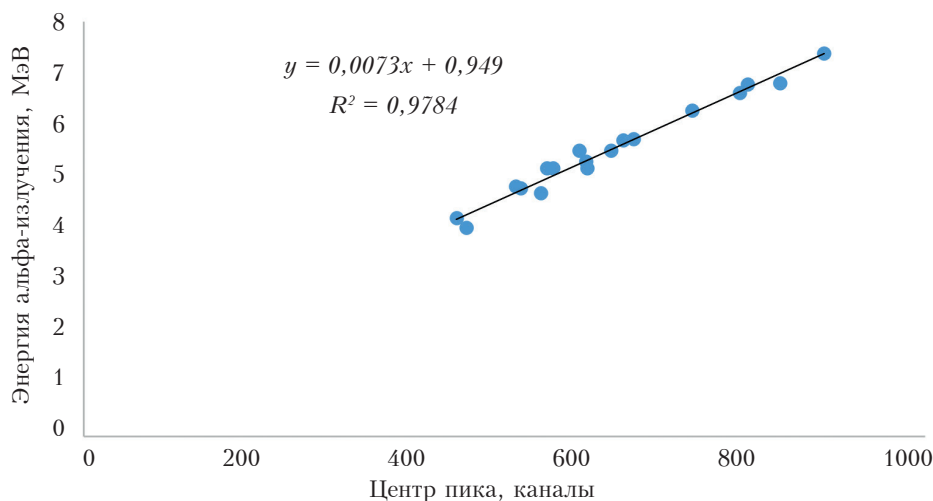


Рис.1. Градуировка по энергии для альфа-излучателей на УМФ-2000 со спектротрическим комплексом.

Рис.2. Градуировка по энергии для бета-излучателей на УМФ-2000 со спектрометрическим комплексом.

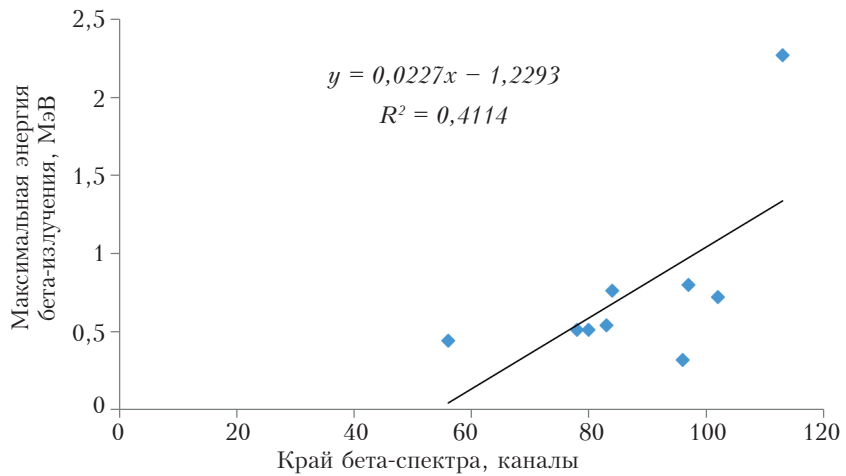
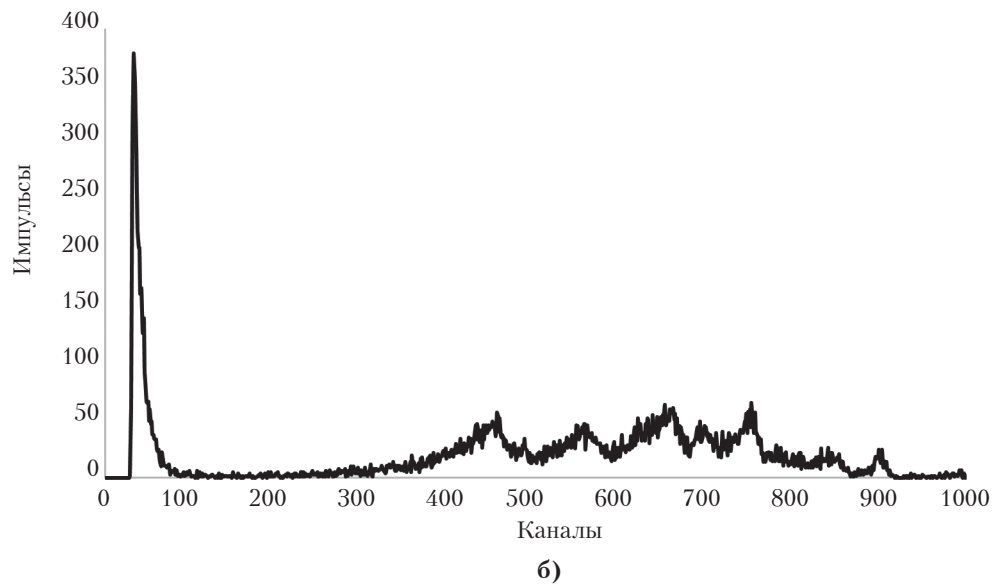
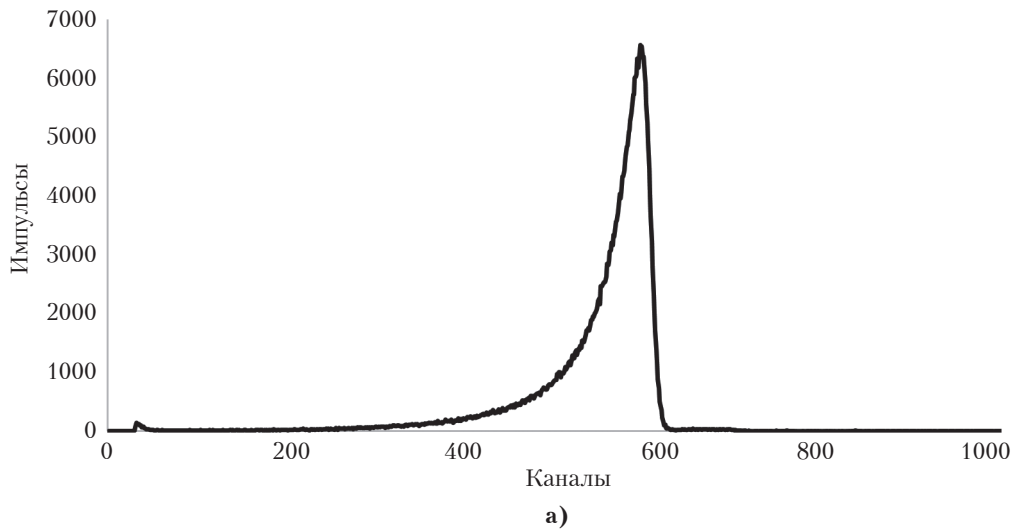


Рис.3. Аппаратурные спектры источников на основе $Po-210$ (а) и $Th-232$ с дочерними изотопами (б).



(рис.3а), так и при наличии серии альфа-излучателей (рис.3б).

Наиболее серьезной проблемой для корректной качественной идентификации альфа-излучателей являются три случая. Первый – измерение толстых проб. В спектрометрии наиболее важной характеристикой, описывающей качество получаемых спектров, является ширина пика на половине высоты (ШППВ). Для сравнения энергетического разрешения спектров, получаемых на УМФ-2000 и на обычном альфа-спектрометре с вакуумной камерой, нами был обработан массив ранее полученных

данных по систематическим измерениям электроосажденных источников, содержащих уран, из проб растворов подземного выщелачивания урана на АО «Далур» (Курганская область). Пробы измеряли на полупроводниковом альфа-спектрометре «Мультирад-АС». Всего было измерено 289 проб, содержащих различное количество урана (рис.4а). Также 10 проб из имевшихся в наличии были измерены на УМФ-2000 в спектрометрическом режиме. Видно, что в обоих случаях толщина альфа-источника критически влияет на энергетическое разрешение альфа-спектров на обоих

Рис.4. Зависимости ширины пика на половине высоты альфа-пику $U-234$, полученных на альфа-спектрометре с вакуумной камерой «Мультирад-АС» (а) и на УМФ-2000 со спектрометрическим комплексом (б).

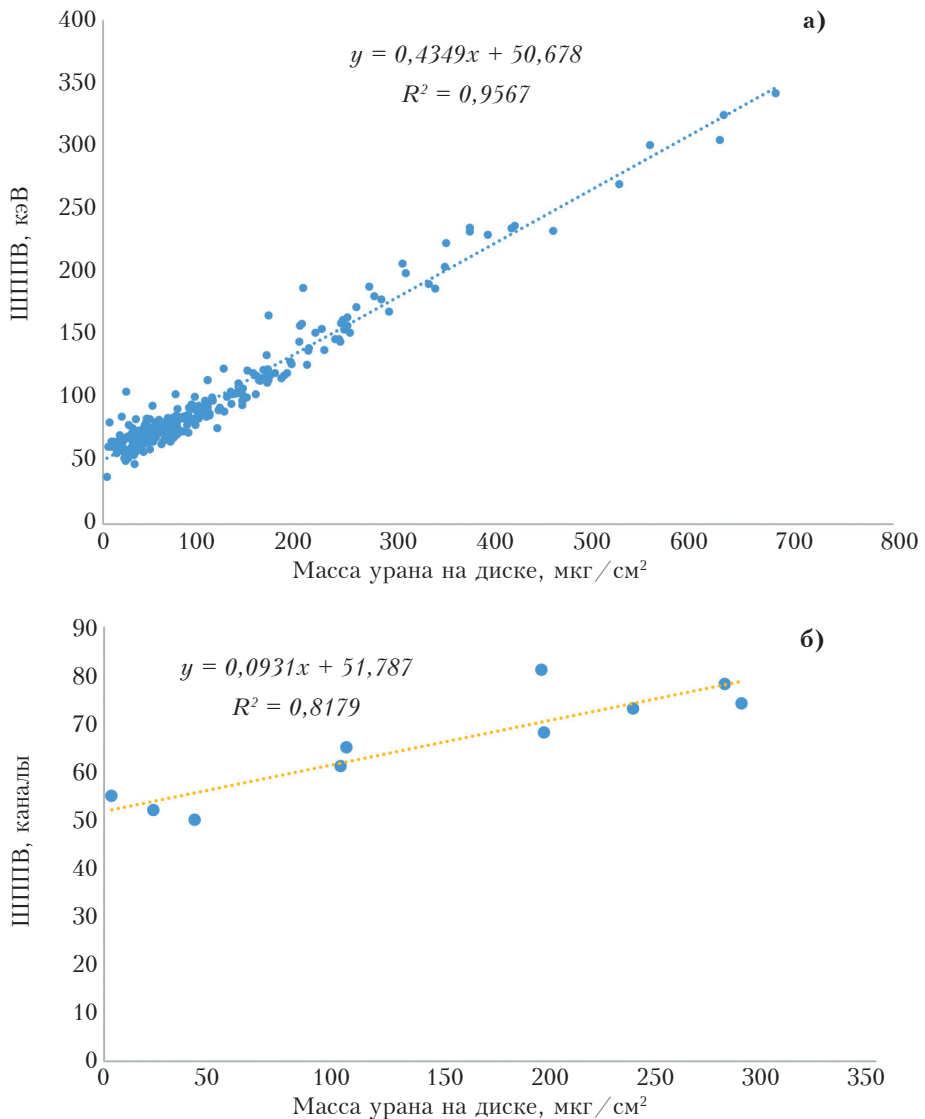
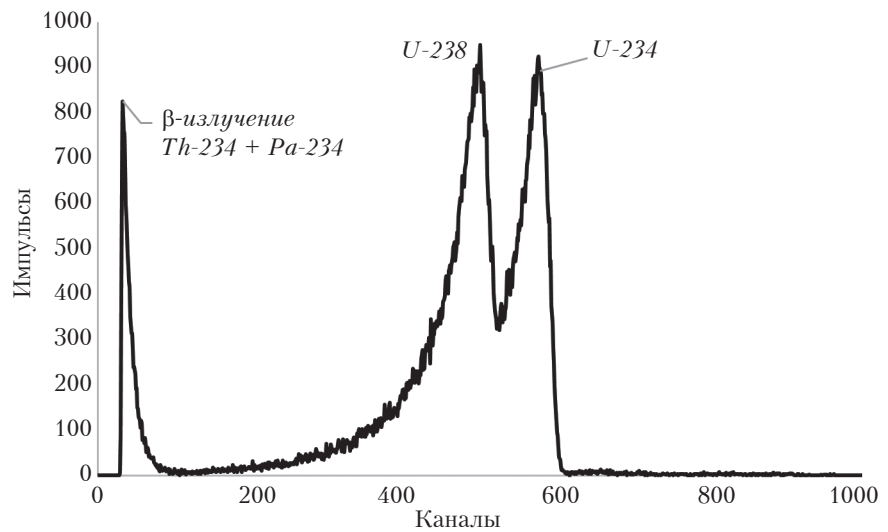


Рис. 5.

Аппаратурный спектр электроосажденной пробы урана на стальном диске с максимальным разрешением (ШППВ = 52 канала), время набора спектра = 160000 с.



приборах, при этом зависимости ШППВ от массовой толщины носят линейный характер. По результатам линейной обработки было рассчитано, что для альфа-спектрометра с вакуумной камерой минимальная ШППВ составляет в среднем 51 кэВ (по паспорту — не менее 40 кэВ). Для УМФ-2000 рассчитанная минимальная ШППВ составляет 51,8 канала, что с учетом ранее полученной градуировки по энергии составляет 370 кэВ. Таким образом, надежное раздельное качественное определение нескольких альфа-излучателей с близкими энергиями, например, $Ra-226$ (4,78 МэВ), $U-234$ (4,77 МэВ), $Th-230$ (4,69 МэВ), $U-233$ (4,82 МэВ) и $Np-237$ (4,79 МэВ), будет крайне затруднительно. Кроме того, как убедительно видно из рис.5, присутствие малых пиков ($U-235$ в пробе природного урана) может быть незамеченным, а количественное определение отдельно $U-234$ и $U-238$ в одной пробе без программной обработки спектра затруднительно.

Вторым затруднительным случаем, как показал опыт эксплуатации, является измерение эманулирующих проб, содержащих изотопы радия. На рис.6 представлены два аппаратурных спектра пробы, содержащих $Ra-224$, снятых непосредственно после приготовления источника и через сутки.

Было обнаружено, что при долгом измерении на спектре появляются лишние альфа-пики, которых не должно быть, исходя из теоретических представлений, причем, ШППВ этих пиков существенно меньше, чем у остальных. Этому эффекту было дано следующее объяснение. При распаде $Ra-224$ появляется изотоп $Rn-220$, являющийся инертным газом, часть которого в процессе измерения адсорбируется на поверхности детектора. При этом торможение альфа-частиц в воздухе исчезает, и эта часть альфа-частиц от $Rn-220$ и $Po-216$ начинает регистрироваться как альфа-частицы более высоких энергий. В результате появились «дополнительные» альфа-пики, которые наложились на «нормальный» альфа-спектр и затруднили интерпретацию и дальнейшую обработку спектрометрических данных. Полное подтверждение такой интерпретации дает спектр пустого радиометра, измеренный сразу после извлечения пробы (рис.6а), который содержит те самые «дополнительные» альфа-пики. Для радиометра УМФ-2000 единственным вариантом корректного измерения подобных проб остается минимизировать время измерения, чтобы радон не успевал накапливаться, а значит не загрязнял камеру прибора во время измерений. Аналогичный эффект был установлен при измерении пробы, содержащей $Ra-223$

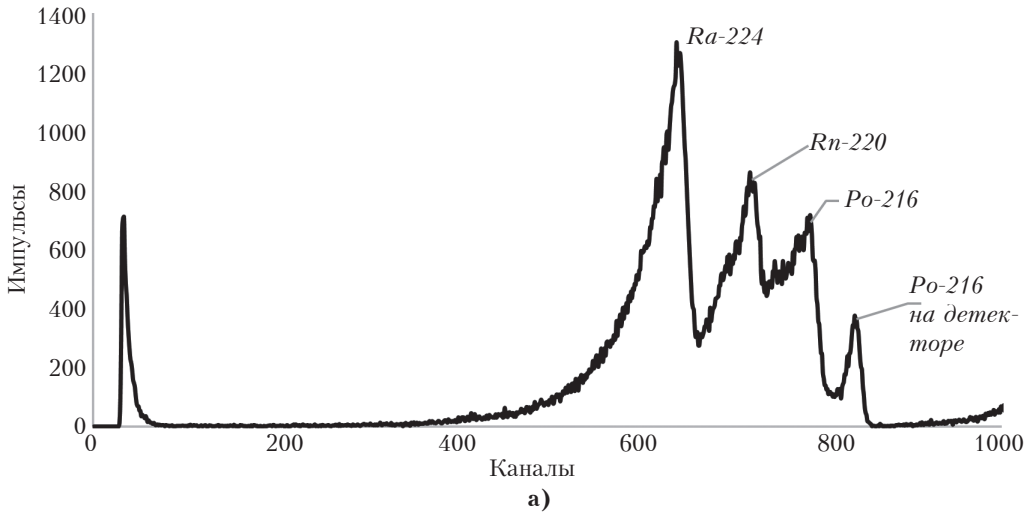
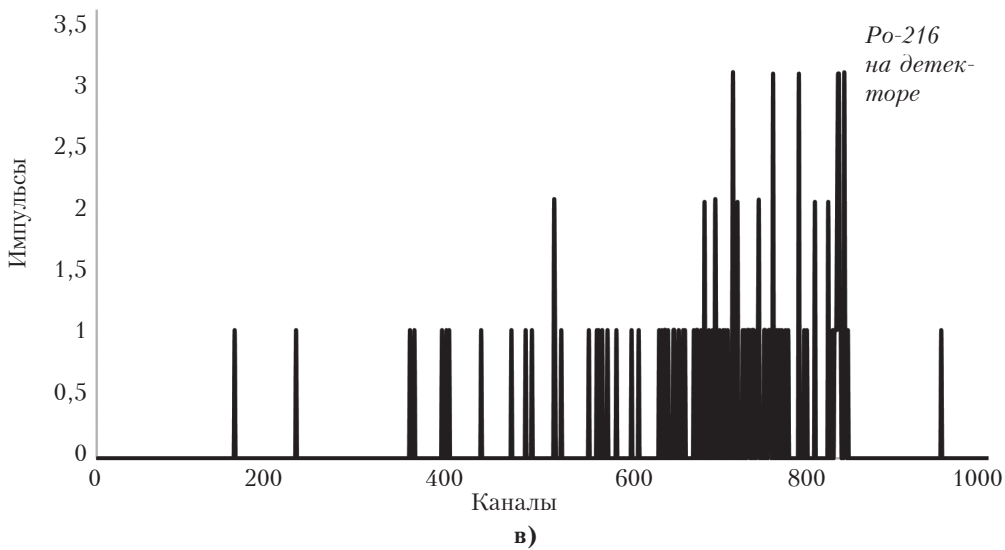
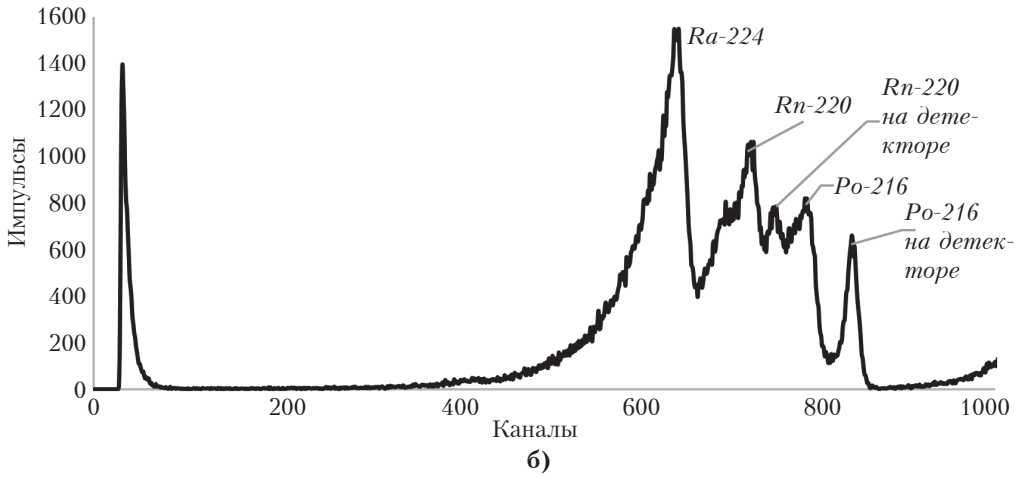


Рис. 6.
 Аппаратурные спектры
 эманлирующих
 источников
 Ra-224:
 измерение
 сразу (а),
 через сутки
 экспозиции
 в радиометре
 (б), показания
 пустого
 радиометра
 сразу после
 извлечения
 пробы (в).



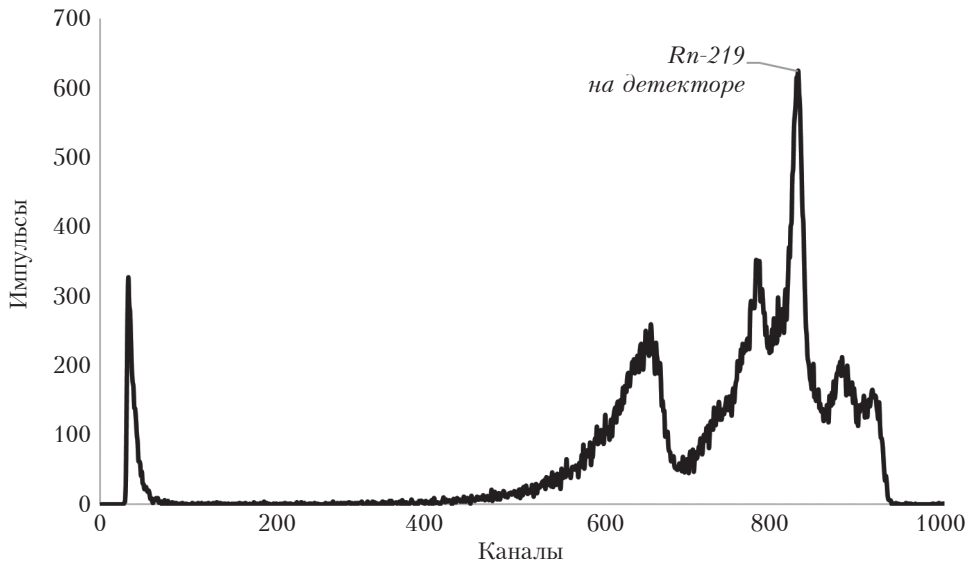


Рис.7.
Аппаратурный спектр
эманлирующего
источника
Ra-223.

(рис.7). Справедливости ради стоит отметить, что подобное загрязнение детектора изотопами радона неоднократно наблюдалось нами и в случае измерений на обычном альфа-спектрометре с вакуумной камерой, однако на таком спектрометре этот эффект по понятным причинам не вызывает появления дополнительных пиков в спектре пробы.

Наконец, третьим затруднением может быть отличие в расстоянии «источник – детектор» для градуировочных источников и измеряемых проб. Так, например, практика показывает, что ОСАИ различных типов имеют разную толщину подложки, и практически во всех случаях эта толщина больше, чем толщина

стальных дисков для электроосаждения урана. Такое отличие приводит к тому, что слой воздуха и, как следствие, смещение пиков из-за торможения альфа-частиц в воздухе будет тоже разным. Проиллюстрируем эту закономерность на простом опыте. Был взят источник Po-210, осажденный на серебряный диск, поскольку этот источник содержал только один альфа-пик, имел хорошее энергетическое разрешение и достаточно высокую активность. Под источник подкладывали разное количество стальных дисков толщиной 0,6 мм, в результате чего расстояние до детектора сокращалось на известную величину, и измеряли источник на УМФ-2000, отмечая положение пика, ШППВ и скорость счета. Результаты полученных измерений представлены на рис.8, где за ноль было взято штатное положение источника, предусмотренное конструкцией. Можно заметить, что для одного и того же источника излучения пик начинает сдвигаться в сторону увеличения номера канала. Зависимость центра пика от расстояния между источником и детектором хорошо аппроксимируется прямой линией, что дает принципиальную возможность вносить соответствующую поправку в градуировку. Также по полученным зависимостям видно, что расстояние до детектора

Табл.3. Параметры измеренных проб воды.

Номер пробы	Проба 1	Проба 2
Сумма щелочных металлов, мг/л	15,9	26,7
Сумма щелочноземельных металлов, мг/л	56,9	166
Железо, мг/л	0,50	1,14
Кремний	7,1	4,2
Уран, мкг/л	876	255
Уран-238, Бк/л (расчет по концентрации урана)	10,8	3,14
Суммарная альфа-активность, Бк/л	16,6	2,65
Суммарная бета-активность, Бк/л	4,0	1,53
Радий-226, Бк/л	0,18	< 0,02

Рис.8. Влияние расстояния между источником и детектором на положение альфа-пика (а), энергетическое разрешение (б) и скорость счета образца (в).

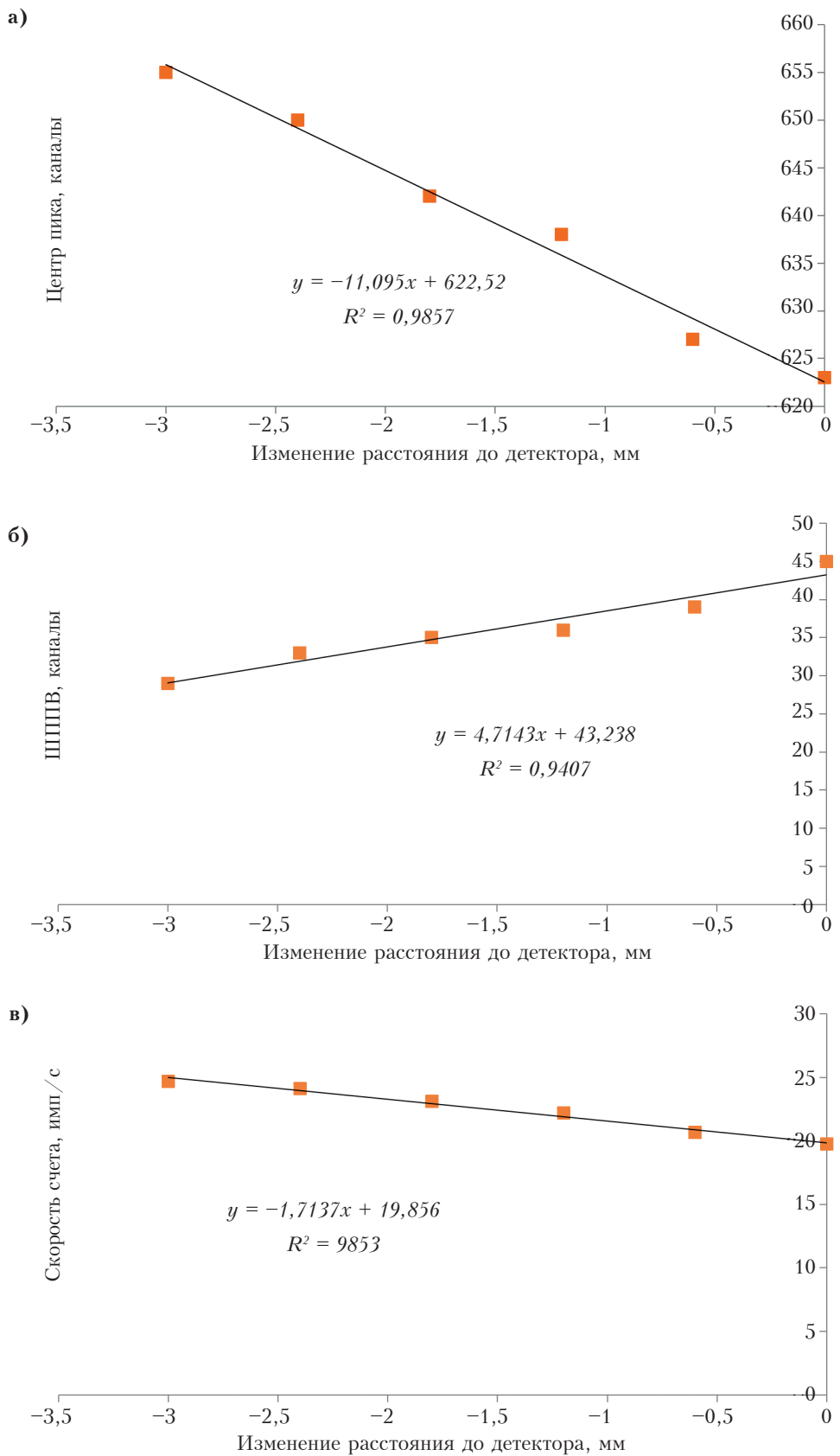




Рис.9. Внешний вид проб после выпаривания 150 мл воды: проба 1 взята из скважины частного дома на берегу оз. Шарташ (г. Екатеринбург), глубина скважины более 100 м; проба 2 взята из шахты в пос. Шерегеш, Кемеровская обл.

будет влиять не только на положение пика, но и на эффективность регистрации альфа-частиц и энергетическое разрешение альфа-спектра, при этом соответствующие зависимости также хорошо обрабатываются прямыми линиями.

В качестве апробации на УМФ-2000 со спектрометрическим комплексом были получены альфа-спектры двух проб, полученные выпариванием 150 мл воды (рис.9), характеристики проб приведены в табл.3. Проба 1 была взята из скважины глубиной более 100 м в частном доме на берегу оз. Шарташ (г. Екатеринбург). По данным радиометрических измере-

ний удельная альфа-активность воды составила порядка 16,6 Бк/л, а по данным масс-спектрометрии вода содержала 870 мкг/л урана, что соответствует его удельной активности 10,7 Бк. Кроме того, в ходе радиохимического анализа было определено, что удельная активность Ra-226 не превышает 0,18 Бк/л. Проба 2 была взята из шахты в пос. Шерегеш (Кемеровская обл.), удельная альфа-активность воды составила порядка 2,6 Бк/л. На альфа-спектрометре с вакуумной камерой подобные пробы измерять крайне нежелательно, поскольку они могут пылить и за счет этого загрязнить альфа-спектрометр. Пробы были измерены на УМФ-2000 в спектрометрическом режиме (рис.10, 11).

Определенная по результатам обработки спектра энергия альфа-частиц составила ≈ 5 МэВ, что примерно соответствует U-234 (табличная энергия – 4,77 МэВ). Этот результат хорошо согласуется с независимо полученными на масс-спектрометре данными о высоком содержании урана в пробах. Небольшое завышение измеренной энергии альфа-частиц U-234 связано с относительно большой толщиной источника, что привело к уменьшению расстояния между верхним слоем источника и детектором и к вышеописанному эффекту

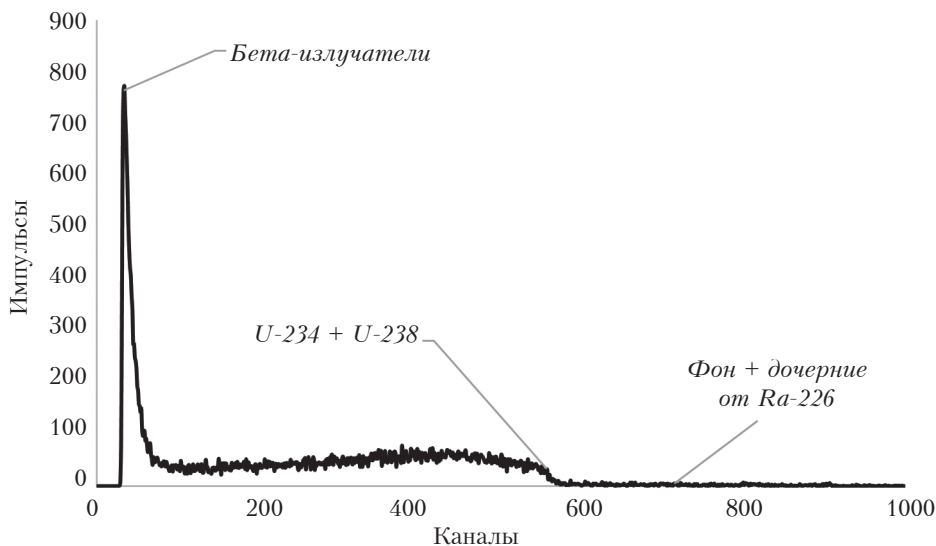
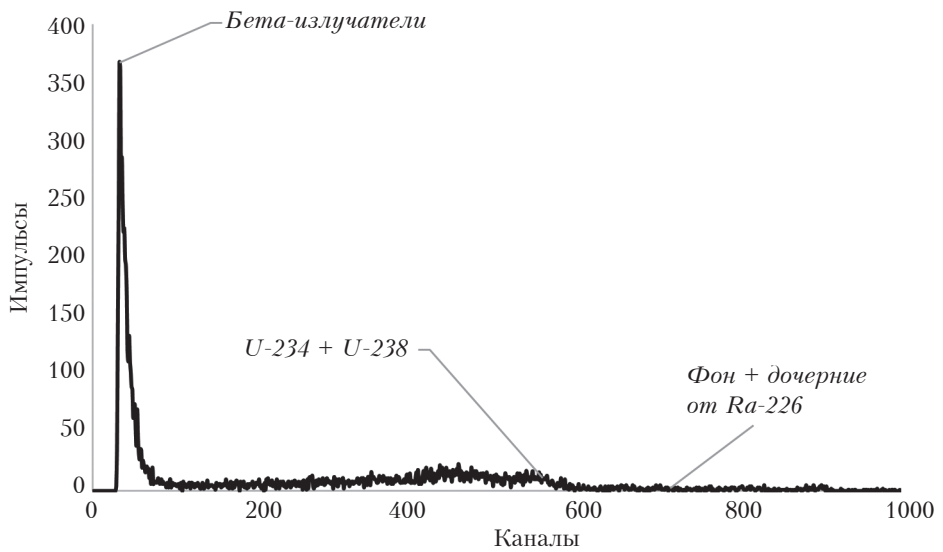


Рис.10. Аппаратурный спектр пробы воды № 1, время набора спектра – 243000 с.

Рис.11. Аппаратурный спектр пробы воды № 2, время набора спектра – 178500 с.



смещения градуировки по энергии. Таким образом, программа «SpDec» позволяет в первом приближении оценить состав альфа-излучателей даже в толстослойных источниках.

Заключение

1. Для спектрометрического комплекса на базе УМФ-2000 построены градуировки по энергии для альфа-излучателей (18 изотопов) и бета-излучателей (8 изотопов). Показано, что для альфа-излучателей график хорошо аппроксимируется линейной зависимостью в диапазоне энергий альфа-излучения от 4 до 7,4 МэВ, при этом коэффициент корреляции линейной обработки составил $R^2 = 0,9784$. Наилучшим вариантом источников для градуировки представляется сочетание двух ОСАИ: с природным ураном и с Th-228 (с дочерними изотопами), которые позволяют охватить диапазон энергий альфа-излучения от 4,2 до 8,7 МэВ.

2. Показано, что градуировочная зависимость для бета-излучателей слабо поддается линейной аппроксимации ($R^2 = 0,4114$). Следовательно, УМФ-2000 в спектрометрическом режиме не может быть использован для качественной идентификации бета-излучателей.

3. Определено влияние расстояния между пробой и детектором и массовой толщины источника на результаты альфа-спектрометрии образцов для УМФ-2000 в спектрометрическом режиме. Показана возможность введения поправки на положение образца в энергетическую градуировку прибора по альфа-излучателям. Также показано, что толщина альфа-источника критически влияет на энергетическое разрешение спектра для радиометра УМФ-2000М, а зависимость ШППВ от массовой толщины носит линейный характер.

4. Описан эффект появления «лишних» альфа-пиков в альфа-спектре эманулирующих проб, содержащих изотопы радия, что может привести к ошибкам в интерпретации альфа-спектров.

5. Проведена апробация спектрометрического комплекса на базе УМФ-2000 на двух пробах, которые были получены выпариванием 150 мл воды. Определенные по результатам обработки спектров энергии альфа-частиц составили ≈ 5 МэВ, что примерно соответствует U-234 (табличная энергия – 4,8 МэВ) и согласуется с независимыми данными по наличию повышенного содержания урана в данных пробах. Таким образом, УМФ-2000

в спектрометрическом режиме может быть использован для качественной идентификации альфа-излучателей после ручной энергетической градуировки с учетом поправок на положение и толщину альфа-источника.

Благодарности

Работа поддержана Министерством науки и высшего образования Российской Федерации (в рамках базовой части госзадания, проект FEUZ-2023-0013).

Литература

1. Васильев А.В., Скворцов С.Е., Николаев А.К., Смирнов М.В., Фролова Т.В. Об измерении суммарной альфа-бета-активности на приборе УМФ-2000 // АНРИ. 2003. № 2(33). С. 56-58.
2. Бахур А.Е., Зуев Д.М., Иванова Т.М., Михайлов А. Модернизированный УМФ-2000 с функциями альфа-спектрометра: практика стандартных рутинных измерений // АНРИ. 2004. № 1(36). С. 51-56.
3. Бахур А.Е., Мануилова Л.И., Иванова Т.М., Зуев Д.М., Гулынин А.В. Полный радионуклидный анализ на низкофоновом альфа-бета-радиометре УМФ-2000 // АНРИ. 2006. № 2(45). С. 36-42.
4. IAEA Live Chart of Nuclides. URL: <https://www-nds.iaea.org/relnsd/vcharthtml/VChartHTML.html> (дата обращения 23.08.2023).

About the Possibilities of Using Alpha Beta Radiometer UMF-2000 with «SpDec» Software for Spectrometric Measurements

Semenishchev Vladimir, Kosmychev Artem, Denisov Evgenii (Ural Federal University, Ekaterinburg, Russia)

Abstract. The experience of exploitation of a α/β -radiometer UMF 2000 with «SpDec» software in spectrometric mode was described. Good linear approximation was shown for energy calibration curve for α -emitters (18 isotopes), whereas the similar energy calibration curve for β -emitters (8 isotopes) showed bad linear approximation. Some limitations in identification of α -emitters due to low energy resolution of spectra, emanation of radon isotopes from sources and difference in source thickness were described. The device was tested using two samples of natural water with a high uranium content.

Key words: UMF-2000, alpha spectrometry, energy calibration, determination of radionuclides.

В.С.Семеничев (к.хим.н., доцент), А.С.Космычев (магистрант), Е.И.Денисов (профессор, д.хим.н., доцент) – Уральский федеральный университет имени первого Президента России Б.Н. Ельцина, г. Екатеринбург.

Контакты: vovius82@mail.ru, v.s.semenishchev@urfu.ru.