



Разработка программно-методических основ выполнения абсолютных измерений активности мягких бета-излучателей с использованием метода тройных-двойных совпадений в жидком сцинтилляторе.

С.А. Пахомов

ФГУП «НПО «Радиевый институт им. В.Г.Хлопина»

С.В. Сэпман, И.А. Харитонов

ФГУП "ВНИИМ им. Д.И. Менделеева"

XII Международное совещание ППСР-2011

С.-Петербург, 10-14 октября 2011 г.

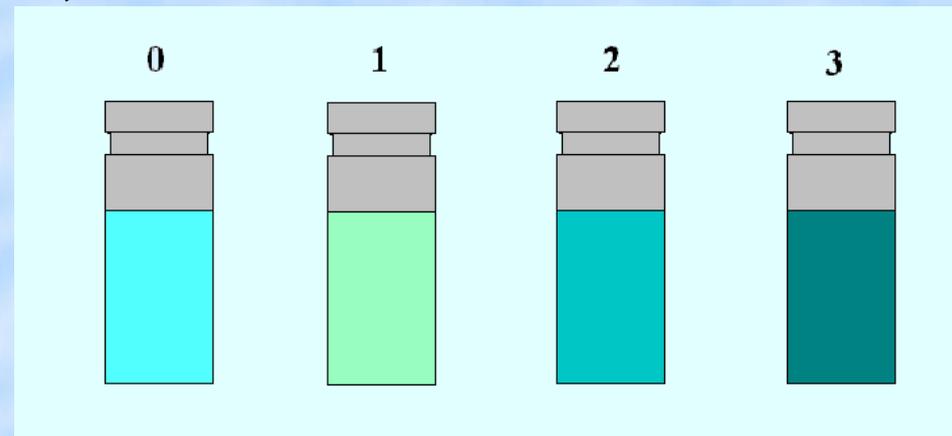
Жидкостной сцинтилляционный метод (LS)

- ★ В настоящее время жидкостной сцинтилляционный метод измерения активности радионуклидов (LS метод) широко применяется в лабораториях радиационного контроля, ядерной медицине, радиоэкологии и метрологии.
- ★ Основные достоинства LS метода заключаются в возможности проведения измерений в 4π-геометрии, простой процедуре приготовления источников и возможности обеспечивать массовые поточные измерения. С помощью LS метода легко измеряются мягкие β-излучающие: ^3H , ^{63}Ni , ^{241}Pu , ^{14}C и электроно-захватывающие: ^{55}Fe , ^{54}Mn радионуклиды .
- ★ Недостатком LS метода является существенная зависимость результатов измерений от степени идентичности измеряемых и калибровочных образцов. Фактором, влияющим на идентичность образцов служит изменение световыходов вследствие эффектов цветового, химического и ионизационного тушения сцинтилляций.

ЖИДКОСТНОЙ СЦИНТИЛЯЦИОННЫЙ РАДИОМЕТР БЕТА-2

Разработчики: БЕЛЯКОВ В.А., КАУФМАН А.С.

/ВНИИМП, г. Москва, 1983г./

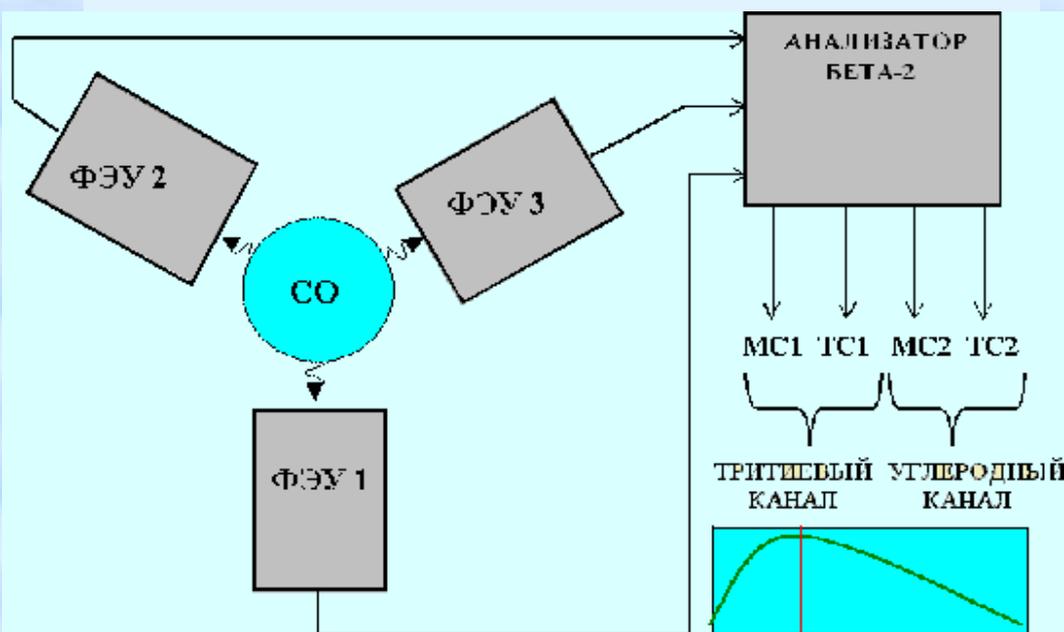


Три ФЭУ 39-А (отбор 1:100),
эфф. >40%, фон 650 имп/с
АНАЛИЗАТОР: разр.вр. сх.совп.
= 100 нс, МС/ТС совп.

Два энергетических канала
(тритиевый и углеродный)

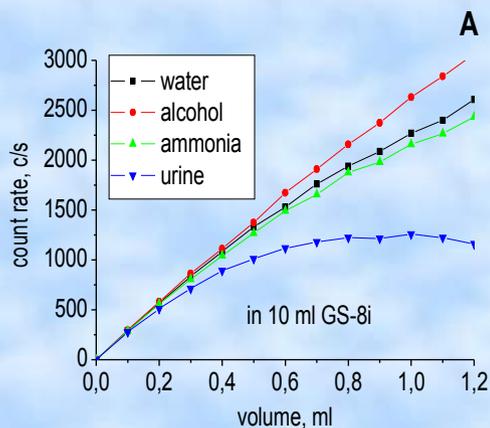
В Радиевом институте две
установки Бета-2
эксплуатируются с 1983 г.

Метод TDCR широко применяется
(но не в абсолютном варианте)

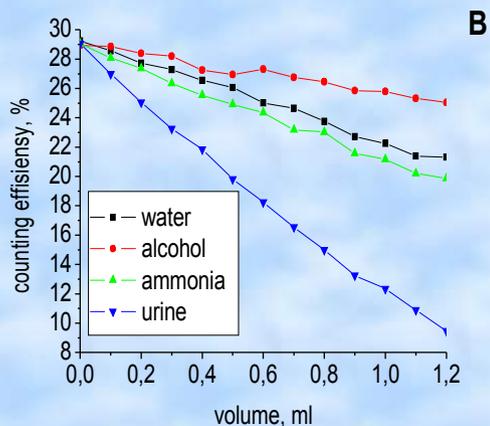


Исследование счетных характеристик различных сцинтилляторов на Бета-2

ЖС-8И

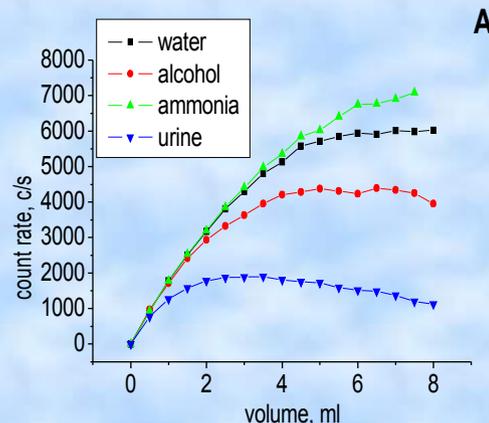


Ск. счета, МС

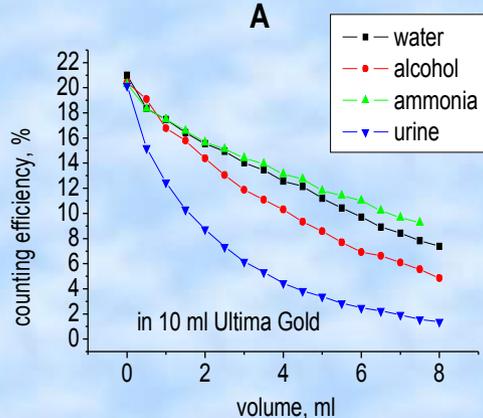


Эфф.%, МС

Ultima-Gold

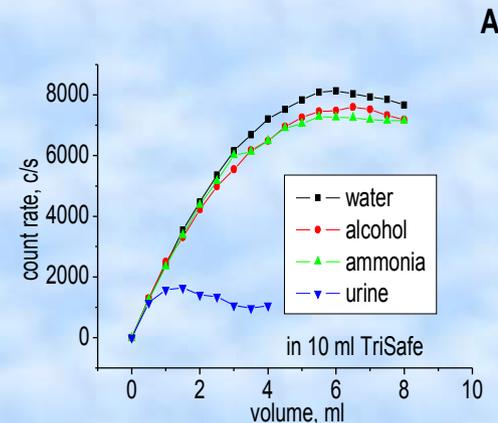


Ск. счета, МС

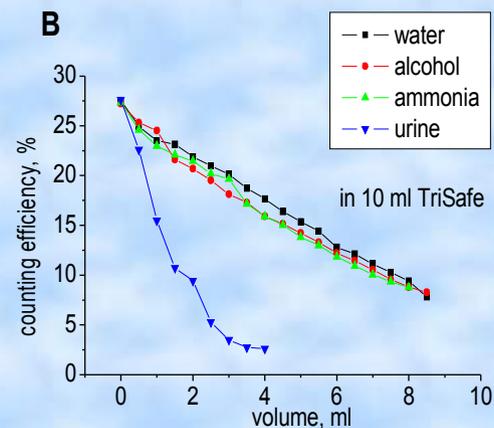


Эфф.%, МС

Tri-Safe OptyPhase

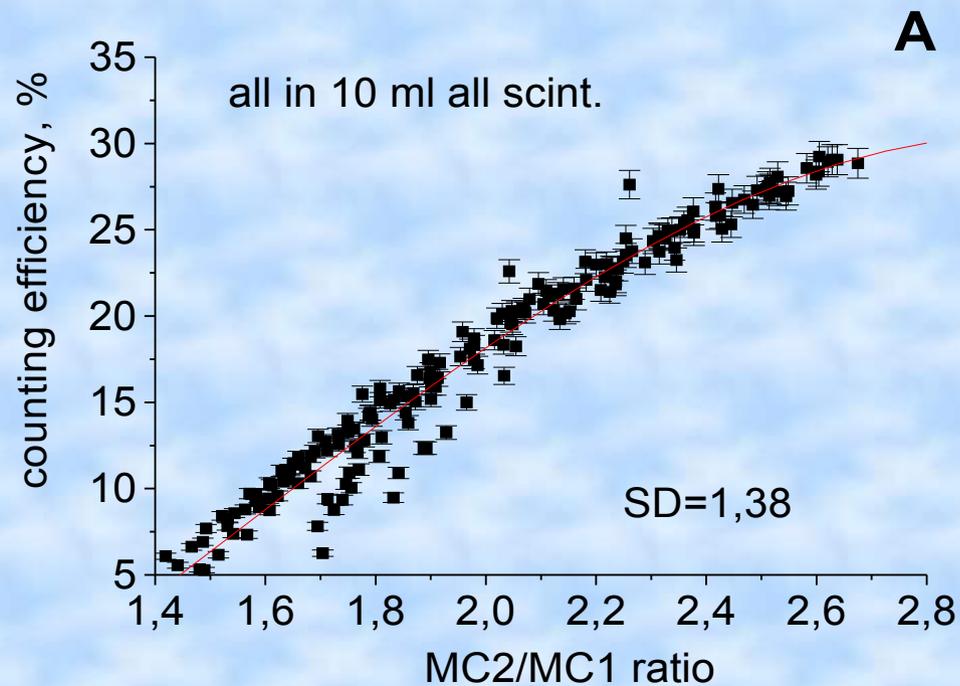
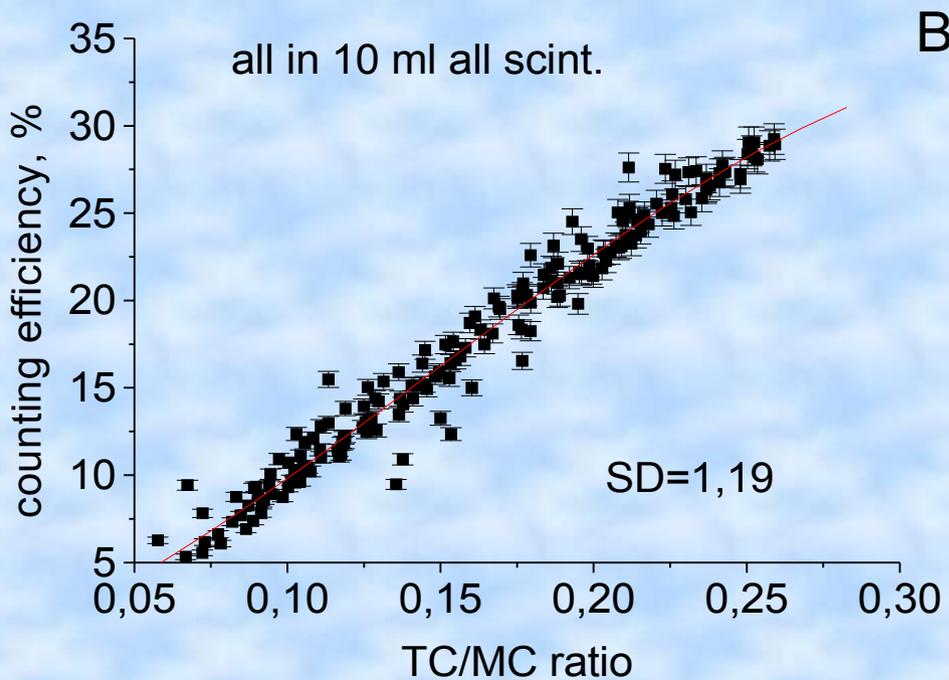


Ск. счета, МС

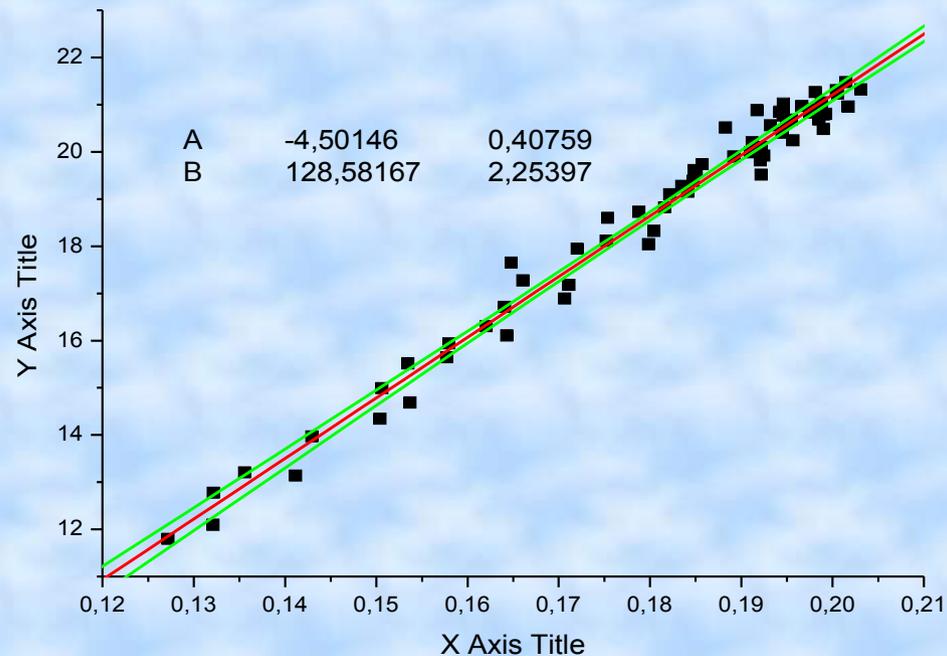
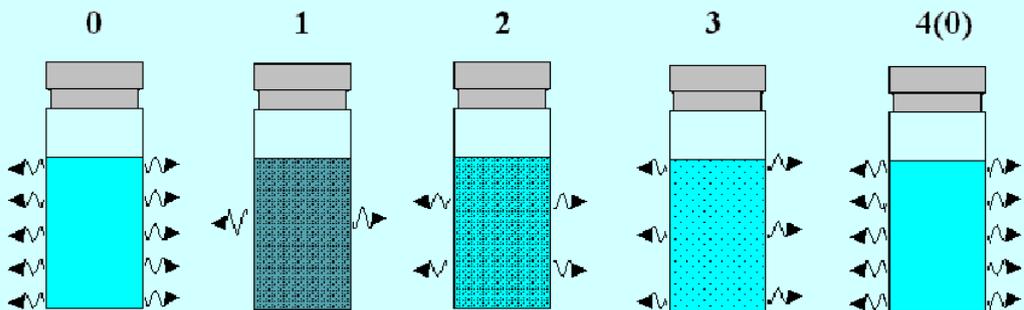


Эфф.%, МС

Обобщение результатов измерений 200 проб



Калибратор многоразовый с переменным тушением



★ Абсолютный вариант TDCR метода был реализован усилиями Национальной Лаборатории Генри Беккереля (LNHB) — Франция и Радиохимического Центра (RC)-Польша.

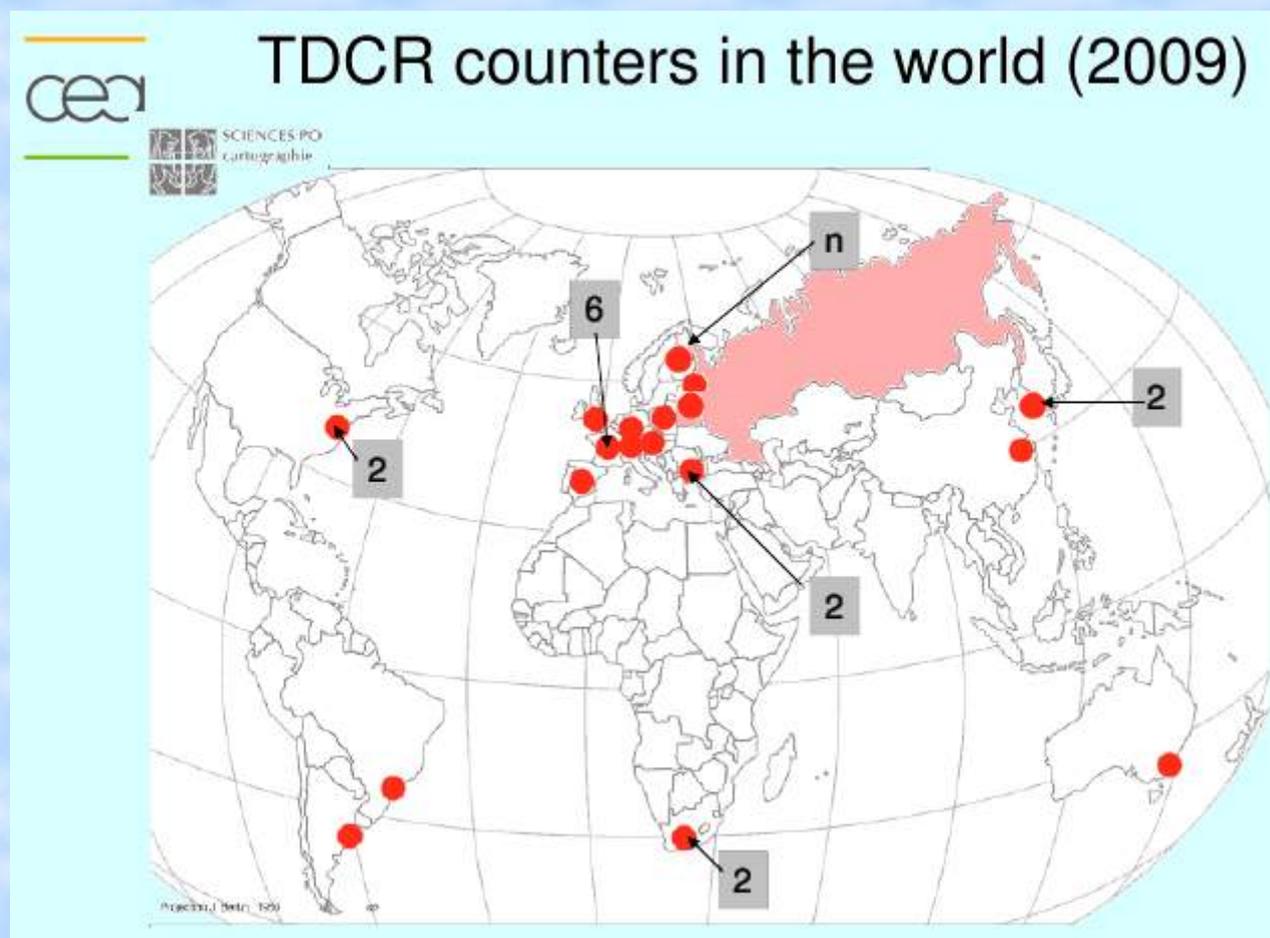
★ В 2002 г. метод начал практически применяться в LNHB, а в 2004 г. TDCR метод был официально аттестован.

★ За последующие 5 лет в мире появилось около 30 TDCR установок и ни одной на территории России и стран СНГ.

1) Broda, R., Pochwalski, K., Radoszewski, T., 1988.

Calculation of liquid-scintillation detector efficiency. Appl. Radiat. Isot. 39 (2), 159–164.

2) Cassette, P., Vatin, R., 1992. Experimental evaluation of TDCR models for the 3PM liquid scintillation counter. Nucl. Instrum. Methods A 312, 95–99.



★ Абсолютный вариант метода тройных-двойных совпадений в жидком сцинтилляторе позволяет отказаться от использования стандартов и осуществлять абсолютные измерения активности радионуклидов.

★ Абсолютный вариант метода TDCR основан на одновременной регистрации совпадений различной кратности – тройных и мажоритарных двойных и сравнении получаемых данных с результатами модельных расчетов.

★ Достоверность результатов измерений зависит от уровня программного обеспечения, применяемого в составе измерительной установки.

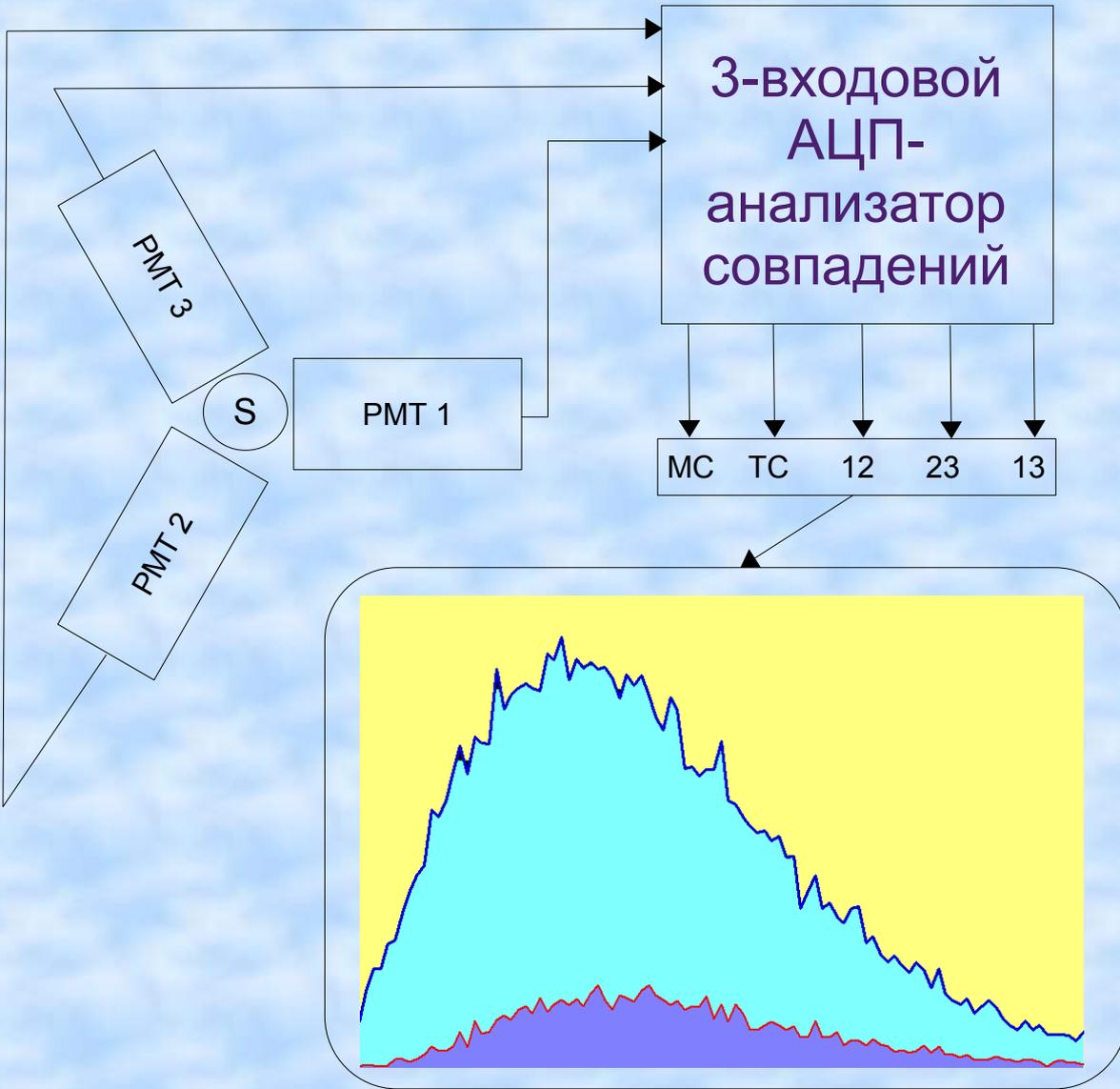
★ Отечественные программы для метода TDCR отсутствуют, в большинстве существующих измерительных систем применяются программы TDCR-02, TDCR-02p и их более поздние модификации TDCR-06b, TDCR-7, TDCR-11 (R.Broda, P.Cassette, K. Maletka, K. Pochwalski и др.)

★ В настоящее время обрабатывающие программы для TDCR метода разрабатываются в Испании, США, Германии, ЮАР и др. странах.

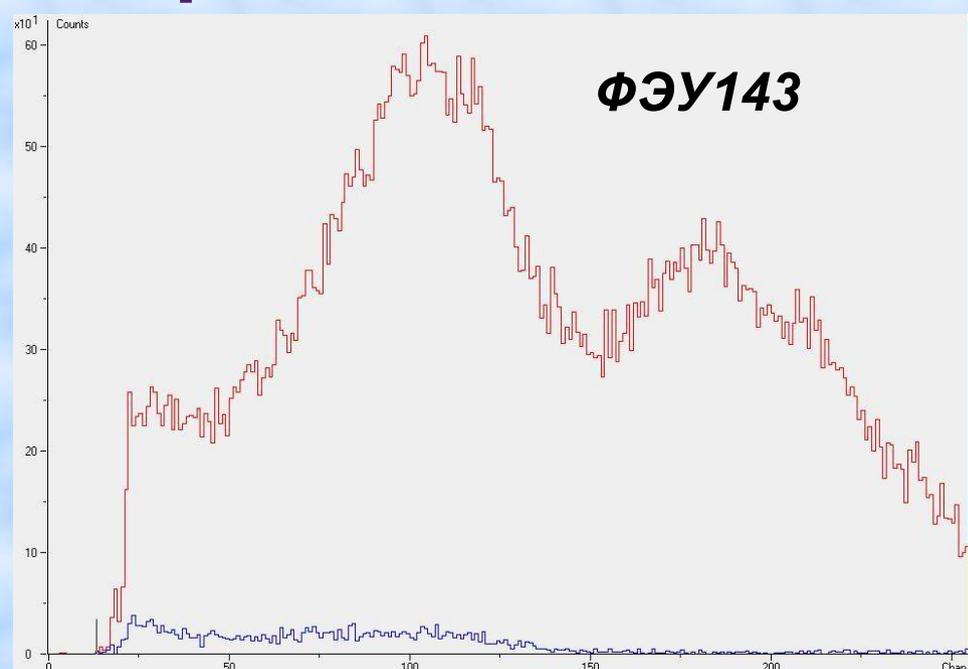
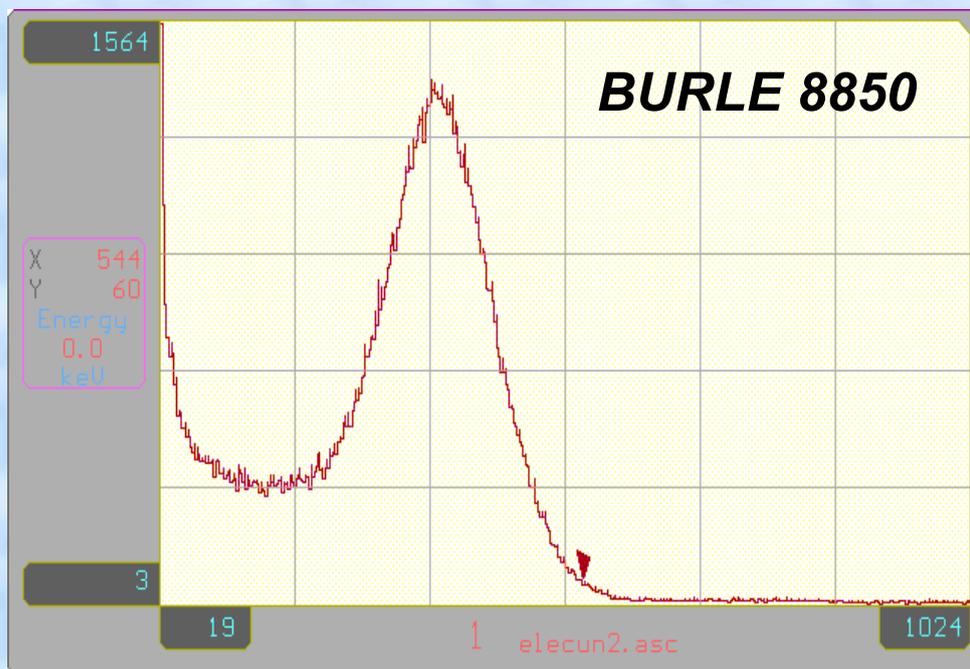
Установка для реализации TDCR метода

Требования к установке:

- ненулевая вероятность регистрации одиночного фотона в каждом канале, правильная установка дискриминаторов;
- малое разрешающее время анализа совпадений (10 -30 нс);
- достаточно большое мертвое время (~10мкс);
- хорошая симметрия PMT;
- хороший светосбор;
- высокая эффективность регистрации при малом фоне;
- одновременная регистрация мажоритарных двойных совпадений (МС), тройных совпадений (ТС) и совпадений 12, 13 и 23 PMT;
- одновременное накопление амплитудных гистограмм для всех вариантов совпадений.



Однофотонные ФЭУ, камера светосбора и анализатор



Математическая модель TDCR метода

Метод TDCR основан на следующих предположениях:

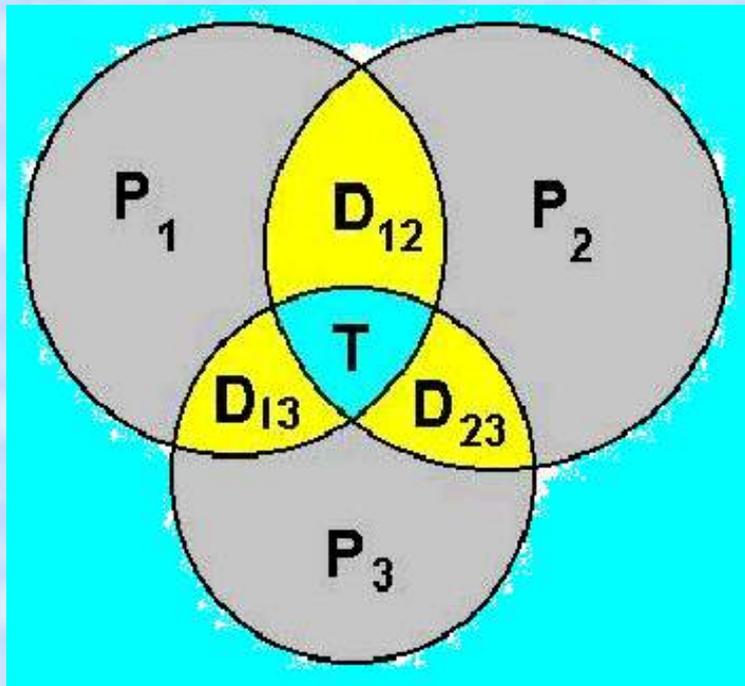
1) Испускания сцинтилляционных фотонов является Пуассоновским процессом с мат. ожиданием m .

2) Вероятность регистрации фотона каждым из ФЭУ $\varepsilon_k > 0$.

Тогда, вероятность регистрации сцинтилляции каждым из ФЭУ равна:

$$P_k = (1 - e^{-m \times \varepsilon_k}),$$

Вероятность совпадений рассчитывается с помощью диаграммы Венна:



$$P_{TC} = P_1 \times P_2 \times P_3$$

$$P_{DC} = P_1 \times P_2 + P_1 \times P_3 + P_2 \times P_3 - 2 \times P_{TC}$$

$$P_{12} = P_1 \times P_2$$

$$P_{23} = P_2 \times P_3$$

$$P_{13} = P_1 \times P_3$$

Математическая модель TDCR метода

3) Зависимость числа фотонов, испускаемых при поглощении β -частицы сцинтиллятором от энергии выражается формулой Биркса:

$$m(E) = \int_0^E \frac{W_0 \times dE}{1 + kB \frac{dE}{dx}}$$

где: W_0 – световыход, фотонов/кэВ;
 dE/dX – линейные энергетические потери;
 kB – коэффициент Биркса.

4) Линейные энергетические потери описываются формулой Бете-Блоха:

$$-\frac{dE}{dx} = \frac{2\pi\rho N_0 r_0^2 mc^2}{\beta^2} \frac{z}{A} \left[\ln \left(\frac{\tau^2(\tau+2)}{2I^2(1/mc^2)^2} \right) + \frac{\tau^2/8 - (2\tau+1)\ln(2)}{(\tau+1)^2} - \delta \right]$$

где: mc^2 - энергия покоя электрон, 0,510967 МэВ,

τ - кинетическая энергия электрона в единицах mc^2 ,

Z - атомный номер,

A - атомная масса,

ρ - плотность вещества,

N_0 -число Авогадро, равное $6,02486 \times 10^{23}$ 1/моль,

$r_0 = 7,94030 \times 10^{-26}$ см²-квадрат классического радиуса электрона,

I -средняя энергия возбуждения сцинтиллятора,

δ - поправка на плотность, =0 при < 100 кэВ.

Математическая модель TDCR метода

5) Окончательно, вероятности регистрации тройных и мажоритарных двойных совпадений определяются усреднением по энергетическому спектру измеряемого радионуклида:

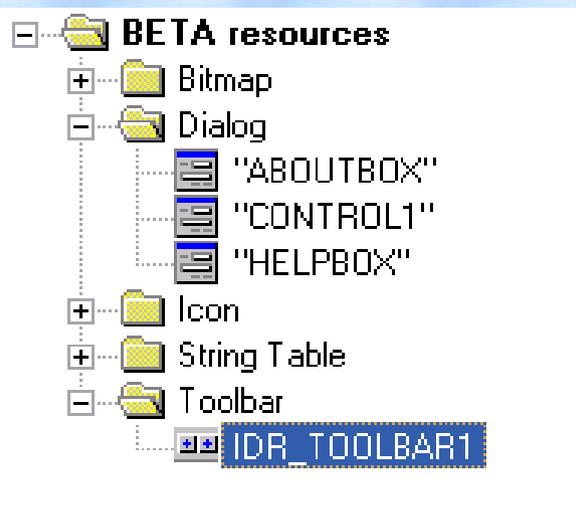
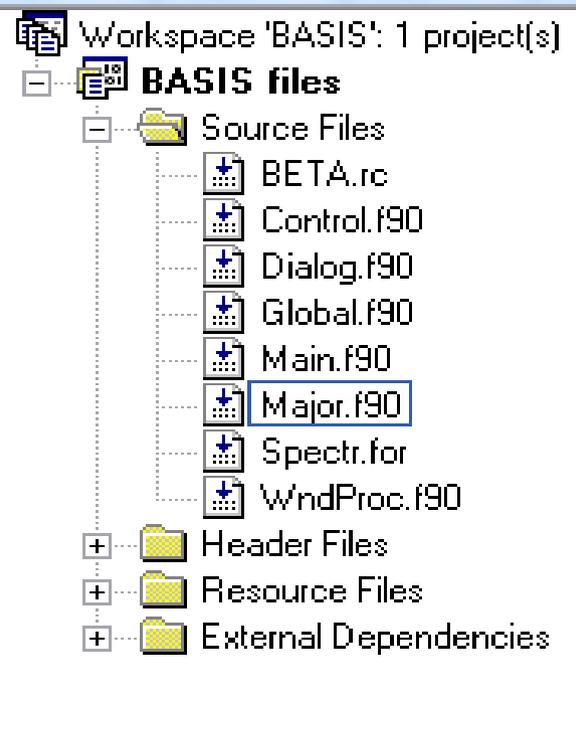
$$\langle \varepsilon_{TC} \rangle = \int_{spectrum} S(E) \times P_{TC}(m(E), \varepsilon_1, \varepsilon_2, \varepsilon_3) \times dE$$

$$\langle \varepsilon_{DC} \rangle = \int_{spectrum} S(E) \times P_{DC}(m(E), \varepsilon_1, \varepsilon_2, \varepsilon_3) \times dE$$

6) С помощью МНК определяют оптимальные значения параметров **kB** и **Ax**, при которых экспериментальный набор точек наилучшим образом описывается расчетной кривой.

$$\left. \begin{aligned} \varepsilon_{DC} &= \varepsilon_{DC}(\omega_0, kB) \\ R &= R(\omega_0, kB) \end{aligned} \right\} \left. \begin{aligned} \varepsilon_{DC}^j &= (n_{TC}^j - b_{TC}^j) / A_x \\ R^j &= \frac{n_{TC}^j - b_{TC}^j}{n_{MC}^j - b_{MC}^j} \end{aligned} \right\}$$

Структура программы BASIS



Программа разработана в среде программирования Compaq Visual Fortran для операционной системы Windows XP.

Основные программные модули показаны в окне Workspace проекта программы.

CONTROL- осуществляет пользовательский диалог (ввод информации и управление);

DIALOG - содержит ряд служебных программ, обслуживающих диалог в системе Windows;

GLOBAL- модуль глобальных переменных;

MAJOR- содержательная часть проекта, производит все необходимые расчеты;

SPECTR- вычисляет бета-спектры (заимствована из программы TDCR-02);

WNDPROC и **MAIN** — процедуры, необходимые для работы программы под управлением Windows.

Состав программного модуля MAJOR

- ★Function Foton(R0) - подбирает оптимальное значение световыхода W0 для заданной величины R0 TDCR отношения.
- ★Function HISQ() - вычисляет значение целевой функции
- ★Subroutine TDCR_LINE() - рассчитывает кривую TDCR-отношения и СКО эксп. точек относительно нее.
- ★Subroutine PS_TDCR(E_{mc},E_{tc},R) — TDCR для модели Пуассона.
- ★Subroutine BN_TDCR(E_{mc},E_{tc},R) — TDCR для бином. распр-ия.
- ★Subroutine PL_TDCR(E_{mc},E_{tc},R) — TDCR для распределения Пойя.
- ★Subroutine MC_TDCR(E_{mc},E_{tc},R) — TDCR методом Монте-Карло.
- ★function BIRKS(E), DRDE(E), BETE(EE)
- ★Subroutine FINT(FUN,A1,B1,REZ)- интегрирование по Гауссу.
- ★Subroutine SPETAB (NN, e_{max},n_{can},EB,SPEB)- интерполяция Бета-спектров из справочника М.М. Колобашкина (Т, ⁶³Ni).
- ★function Eightkin(X,M,N,X0,Y0)- интерполяция методом Лагранжа по сх. Эйткена для m узлов.
- ★Subroutine FITNES()- оптимизация методом комплексов.
- ★Function Snap(Step), CURWIN(X,F)
- ★Subroutine Rubic(Step,Fun,MAXNOM)
- ★Subroutine SORTING(N,F,X), curmin(X1,X2,X3,Y1,Y2,Y3,X0,Y0)
- ★Subroutine Invset(x,y), Protokol(), Read()

Пользовательский интерфейс и структура данных программы BASIS

Sample TATIANA_2

60 cek

1.2450.7020.8920.8750.882

1.000 ml

T3

977.22 1631.96 1239.34 1149.44 1197.81

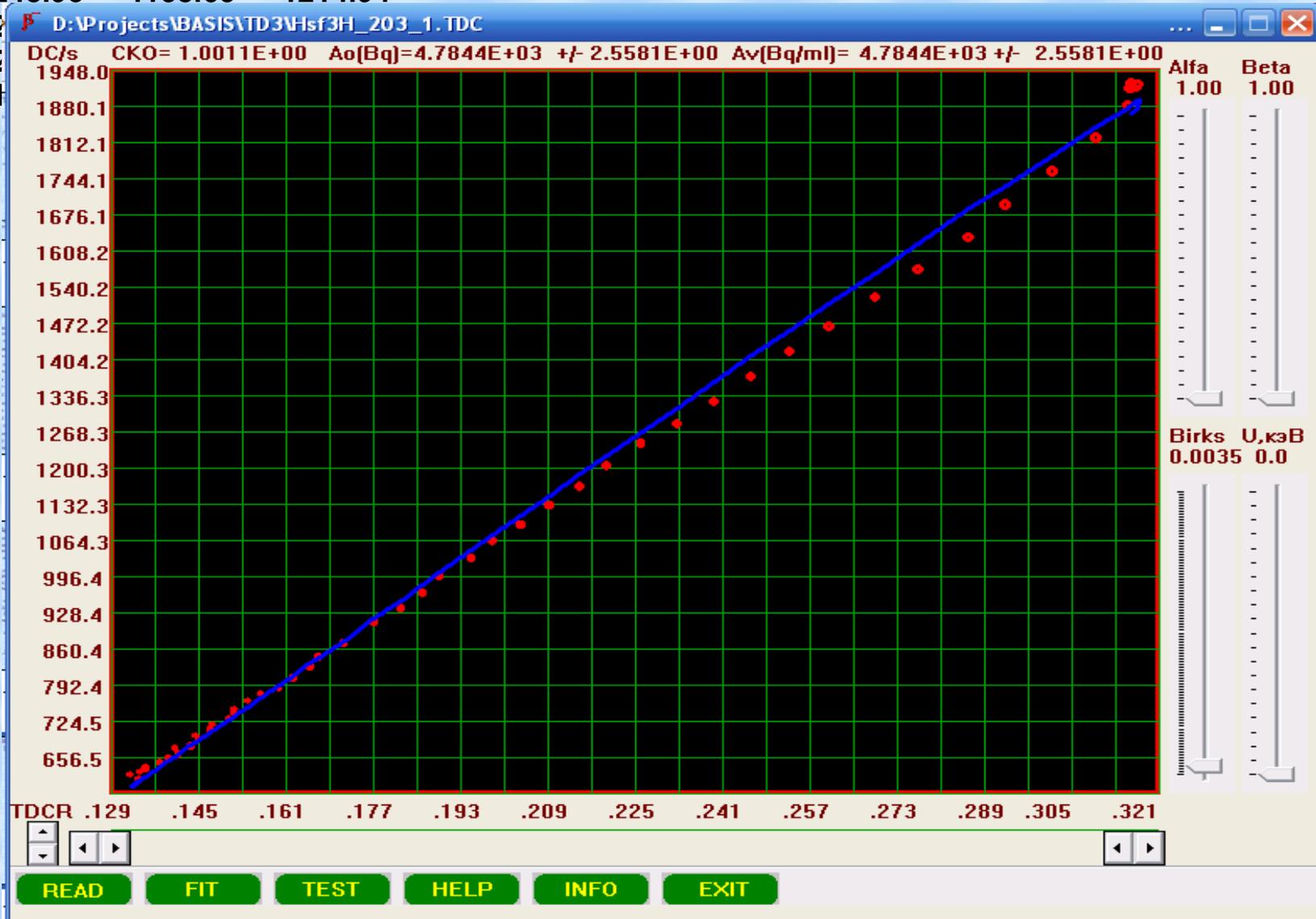
984.80 1631.82 1241.77 1156.78 1202.80

988.05 1646.19 1248.93 1158.63 1214.94

979.01 1629.50 12

982.33 1637.76 12

953.29 1609.75 11



Сравнение программы BASIS с TDCRB-2P на базе тестовых данных LNHB (^{63}Ni)

№	Программа Tdcrb-2P	Программа BASIS	Δ , %
	А, Бк/г	А, Бк/г	
1	40 038,4	39 680,9	-0,89
2	39 724,9	39 314,8	-1,03
3	39 610,9	39 188,7	-1,07
Среднее	39 791,4	39 394,8	-1,0

Сравнение полученных с использованием разработанной программы обработки трех наборов экспериментальных данных для ^{63}Ni , приведенных в качестве тестового примера в файлах описания программы «TDCRB-2p» (см. материалы сайта LNHB) с опубликованными данными показали различие на 1%, что свидетельствует о пригодности разработанной программы к использованию при обработке результатов измерений по абсолютному методу.

Сравнение программы BASIS с TDCRB-2p на базе данных ВНИИМ (третий)

В настоящее время во ВНИИМ проходит испытания новая жидкостная сцинтилляционная установка фирмы HIDEX SL300. На этой установке измерялись пробы тритиевой воды, полученной из LNНВ. Заявленная уд. Активность составляла 33,41 кБк/г. Результаты обрабатывались программой TDCRB-2



№	Программа Tdcrb-2P	Программа BASIS	Δ , %
	А, Бк/г	А, Бк/г	
1	34070	33893	-0,51
2	34080	34214	0,39
3	33040	34188	3,4
Среднее	33730	34098	1,09

ВЫВОДЫ

- 1) В данном докладе приводятся результаты исследований оригинальной компьютерной программы, обеспечивающей получение значений активности радионуклидов по результатам регистрации импульсов тройных и мажоритарных двойных совпадений при измерении активности в счетных образцах с искусственно изменяемой величиной тушения сцинтилляций.**
- 2) Программа была использована для обработки экспериментальных данных полученных во ВНИИМ при измерении активности трития в дистиллированной воде на установке HidexSL300 параллельно с программой TDCRB-02. При этом, было получено хорошее согласие результатов обработки обоими программными продуктами..**
- 3) Разработка программы является важным этапом создания отечественного варианта программно-методического и аппаратного варианта реализации метода абсолютных измерений активности мягких бета-излучателей с использованием метода тройных-двойных совпадений в жидком сцинтилляторе**