

4. РАДИОАКТИВНОСТЬ МЯГКИХ β -ИЗЛУЧАТЕЛЕЙ

Для измерений мягкого β -излучения изотопов ^3H и ^{14}C целесообразно использование газовых счетчиков внутреннего наполнения или жидких сцинтилляторов. Счетчики внутреннего наполнения могут работать как в проточном, так и в стационарном режимах. Проточные счетчики находят применение для счета образцов с малой удельной активностью и не используются для труднолетучих меченых веществ. В тех случаях, когда они не применимы, могут быть использованы тупиковые счетчики различных типов.

4.1 Измерение трития

Методы, позволяющие регистрировать β -излучение трития основаны на регистрации тормозного (рентгеновского) излучения при торможении электронов в стенках счётчика, а так же излучения Черенкова-Вавилова, возникающее при торможении β -излучения в окне ФЭУ.

История развития безокошечных методов измерения трития берет свое начало с кварцевой ионизационной камеры. Затем появились счётчики Гейгера-Мюллера. Для регистрации трития успешно применяются капилляры из сцинтиллирующей пластмассы. В настоящее время максимальное распространение получил метод β -жидкостной сцинтилляции. При этом часто тритий переводят в молекулы веществ, хорошо растворяющихся в тех же растворителях, в которых хорошо растворяются сцинтилляторы (например, в бензол).

При сравнительно высоких активностях, тритий хорошо регистрируется масс-спектрометрическими методами. Здесь мы на них останавливаться не будем.

4.2 Органические вещества

Обычно в рабочий объем счетчиков внутреннего наполнения вводят непосредственно не само меченое тритием или радиоактивным углеродом вещество или его пары, а соединения, полученные путем восстановления продуктов сжигания органических образцов. Наилучшие результаты достигаются для таких смесей, как водород-метан и водород-метан-ацетилен, полученных путем восстановления углекислого газа и паров воды. В качестве гасящих добавок в этих случаях могут быть использованы пары циклогексана.

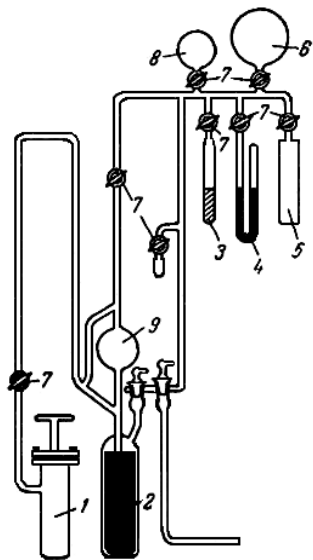


Рис.23. Вакуумная установка для измерения активности тупиковыми счетчиками: 1 - давилка; 2 - насос Теплера; 3 - ампула с гасящей добавкой; 4 - манометр; 5 - тупиковый счетчик; 6 - баллон с H_2 ; 7 - краны; 8 - баллон с CH_4 , 9 - постоянный объем установки.

Методика определения активности проб, меченых ^3H или ^{14}C , основана на получении смеси метан-водород путем нагревания органического вещества 640°C в присутствии цинка, окиси никеля и воды. Радиоактивная смесь газов подается на вакуумную установку с тупиковым счётчиком (**Рис. 23**). В кварцевые тонкостенные капилляры, предварительно взвешенные на аналитических весах, с помощью микрошприца помещают по 5-10 мг меченого органического вещества, 5-10 мг воды, точные навески которых определяют при повторных взвешиваниях. Капилляры запаивают и затем закладывают в ампулы объемом 100 см^3 , изготовленные из кварца. Туда же помещают по 1 г цинковой пыли и 100 мг окиси никеля. Ампулы присоединяют к резиновым шлангам на установке для откачивания и откачивают форвакуумным насосом до давления 10^{-2} - 10^{-1} мм рт. ст. Для этого ставят кран 5 из положения «на воздух» в положение «на откачку» и включают форвакуумный насос,

затем открывают кран 2. После того как давление в ампулах, падает до $5\cdot 10^{-2}$ мм рт. ст., закрывают кран 2 и краном 5 пускают в систему воздух. Снимают шлиф 4 с установки и запаивают ампулы под вакуумом. Встряхиванием разбивают внутри ампул капилляры с меченым веществом. И затем содержимое ампул прогревают в трубчатой печи в течение 3 ч при температуре 640°C .

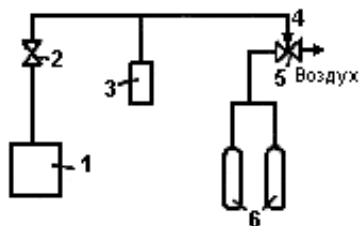


Рис. 24. Вакуумная установка для откачивания ампул: 1 - форвакуумный насос; 2, 5 - вакуумные краны; 3 - манометрическая лампа; 4 - шлиф; 6 - ампулы

Во время прогрева ампул установку (**Рис. 23**) готовят к работе: рабочий объем счетчика откачивают до давления 10^{-3} - 10^{-2} мм рт. ст. Откачку прерывают, перекрывая кран, и подают из баллонов 6, 8 смесь метана и водорода; подачу этих газов прекращают при достижении давления 10-20 мм рт. ст., затем в объем счетчика пускают пары циклогексана до установления общего давления 40 мм рт. ст. В этих условиях со стандартным внешним препаратом активностью 1 мкюри находят плато счетчика и его фон; по окончании определения этих параметров (при закрытых кранах манометра, баллонов, емкости с циклогексаном и насоса Теплера) снова

откачивают установку. Прогретую ампулу с активными газами помещают в давилку, герметизируют давилку, закрывая ее крышкой, и создают в ней разрежение. С помощью винта в крышке давилки спускают боек и раздавливают ампулу. Затем весь газ из ампулы перекачивают насосом Теплера в постоянный объем установки 9 при открытом счетчике. Рабочий объем перекрывают краном, а из остальной части установки откачивают активные газы. Затем откачку прекращают и в счетчик, как описано выше, вводят пары циклогексана. Измеряют активность газа в объеме счетчика и рассчитывают скорость счета I_c (в имп/мин). Полную активность навески определяют по формуле:

$$I = (I_c - I_\phi) \frac{V}{V'} \quad (16)$$

где V - полный объем установки (включая объем счетчика), занятый активным газом; V' - объем счетчика.

4.3 Радиоуглеродный анализ

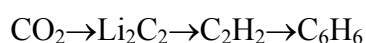
Радиоуглеродный анализ, основанный на определении содержания ^{14}C в исследуемом материале применяется в археологии для определения возраста древесины, раковин, костей, картин, тканей, керамики и т.п. Образец, предназначенный для такого анализа, следует брать с помощью абсолютно чистых инструментов и хранить в сухом виде в стерильном полиэтиленовом пакете. Необходима точная информация о месте и условиях отбора. Идеальный образец древесины, древесного угля или ткани должен весить 30 г. Каждый образец необходимо тщательно очистить от более древних и более молодых углеродсодержащих загрязнений, например, от корней выросших позже растений или от обломков древних карбонатных пород. За предварительной очисткой образца следует его химическая обработка в лаборатории. Для удаления инородных углеродсодержащих минералов и растворимых органических веществ, которые могли проникнуть внутрь образца, используют кислотный или щелочной раствор. После этого органические образцы сжигают, раковины растворяют в кислоте. Обе эти процедуры приводят к выделению газообразного диоксида углерода. В нем содержится весь углерод очищенного образца, и его иногда превращают в другое вещество, пригодное для радиоуглеродного анализа.

Существует несколько методов измерения активности радиоуглерода. Один из них основан на определении количества электронов, выделяющихся в процессе распада ^{14}C . Интенсивность их выделения соответствует количеству ^{14}C в исследуемом образце. Время счета составляет до нескольких суток, поскольку за сутки происходит распад всего лишь примерно четверти миллионной доли содержащегося в образце количества атомов ^{14}C . Другой метод требует использования масс-спектрометра (в последние годы популярной стала ускорительная масс-спектрометрия), с помощью которого выявляются все атомы с массой 14; особый фильтр позволяет различать ^{14}N и ^{14}C . Поскольку при этом нет необходимости ждать, пока произойдет распад, счет ^{14}C можно осуществить меньше, чем за час; достаточно иметь образец массой в 1 мг.

Радиометрический метод требует гораздо менее громоздкого оборудования. Сначала применяли пропорциональный счетчик, определяющий состав газа. Энергия радиационного фона окружающей среды обычно колеблется в широких пределах, в отличие от радиации, вызванной распадом ^{14}C , энергия которого, как правило, близка к нижней границе фонового спектра. Для подавления фона закрывают экранами из железа (железо должно быть изготовлено до 2-ой мировой войны, так после ядерных испытаний все металлы загрязнены техногенными радионуклидами) или высокочистого свинца толщиной в несколько сантиметров. Кроме того, стенки самого счетчика экранируют расположенными вплотную один к другому счетчиками Гейгера, которые, задерживая все космическое излучение, примерно на 0,0001 секунды дезактивируют и сам счетчик, содержащий образец – используется активная защита по схеме антисовпадений). Метод экранирования сводит фоновый сигнал до нескольких распадов в минуту (образец древесины массой 3 г, относящийся к 18 веку., дает ~40 случаев распада ^{14}C в минуту), что позволяет датировать довольно древние образцы.

Сейчас широко применяется метод жидкостной сцинтилляции. При его использовании полученный из образца углеродсодержащий газ превращают в жидкость, которую можно хранить и исследовать в небольшом стеклянном сосуде. В жидкость добавляют сцинтиллятор. В сцинтилляционном счетчике имеются две такие трубки. Ложный сигнал можно выявить и исключить, поскольку он послан лишь одной трубкой. Современные сцинтилляционные счетчики характеризуются очень низким, почти нулевым, фоновым излучением, что позволяет датировать с высокой точностью образцы возрастом до 50000 лет.

Сцинтилляционный метод требует тщательной подготовки образцов, поскольку углерод должен быть превращен в бензол. Процесс начинается с реакции между диоксидом углерода и расплавленным литием, в результате которой образуется карбид лития. В карбид понемногу добавляют воду, и он растворяется, выделяя ацетилен. Этот газ, содержащий весь углерод образца, под действием катализатора превращается в прозрачную жидкость.



При достаточном количестве датируемого углерода в пробе керамики открывается возможность применения метода прямого пиролиза для получения бензола для последующего традиционного измерения радиоуглерода методом жидкостно-сцинтилляционного счета.

Погрешность определения возраста радиоуглеродным анализом находится в пределах от семидесяти до трёхсот лет.

4.4 Пары воды

Измерение тритированной воды – сложная и до сих пор до конца не решённая задача. Вода крайне отрицательно влияет на работу любых счётчиков внутреннего наполнения, особенно пропорциональных и сцинтилляционных. Кроме того, пары воды адсорбируются на ведущих к счётчику трубопроводах, и в самом счётчике. В результате фон счётчика резко возрастает, так что продолжительные измерения нестационарных концентраций паров становятся невозможными, а о количественном измерении вообще не может идти речи. Для преодоления адсорбции, трубопроводы и счётчик прогревают до температур выше кипения воды. Однако при этом собственный фон пропорционального счётчика резко возрастает за счёт возникновения ложных импульсов, а сцинтилляционные счётчики (даже капилляры из сцинтиллирующей пластмассы) вообще греть нельзя.

Лучшие результаты даёт использование паров абсолютного спирта – спирт достаточно эффективно препятствует адсорбции воды на стенках трубопроводов и счётчика, кроме того в пропорциональном счётчике он выступает как гасящая добавка. На **Рис.24** изображена установка для измерения стационарной проницаемости полимеров по отношению к воде, меченой тритием. Пробы воды, прошедшей через мембрану, периодически перемещали в тупиковый счётчик Гейгера, где и измеряли. Спирт служил гасящей добавкой. На **Рис. 25** показана аналогичная установка для изучения нестационарной влагопроницаемости полимеров, снабженная проточным пропорциональным счётчиком.

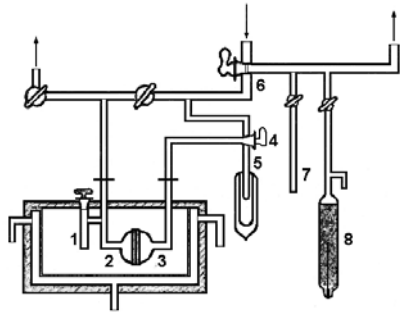


Рис. 24. Установка для измерения стационарной проницаемости паров воды, меченой тритием, облучённых полимеров: 1 – вода, меченая тритием; 2 – резервуар диффузионной ячейки с полимерной мембраной; 3 – приёмник диффузионной ячейки; 4 – вакуумный кран; 5 – вымораживатель тритиевой воды; 6 – перекидной вакуумный кран; 7 – абсолютный спирт; 8 – тупиковый счётчик Гейгера.

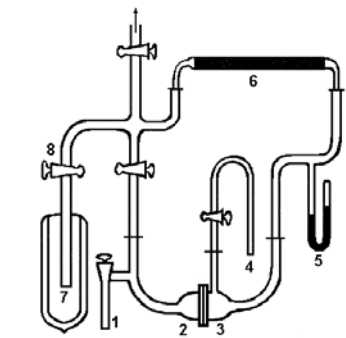
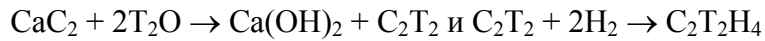
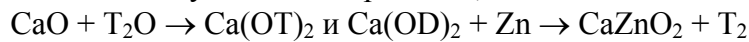


Рис. 25. Установка для измерения нестационарной влагопроницаемости полимеров с гейгеровским проточным счётчиком внутреннего наполнения: 1 – тритиевая вода; 2 – резервуар диффузионной ячейки, 3 – приёмник; 4 – спирт; 5 – ртутный манометр; 6 – проточный счётчик Гейгера; 7 – вымораживатель паров тритиевой воды; 8 – кран.

Большее распространение получили методы перевода тритиевой воды в газы, удобные для регистрации – газообразный тритий, ацетилен, этан и др. При этом используются такие реакции, как



Реакции идут при повышенных (300-350°C) температурах. Иногда тритиевую воду концентрируют гидролизом. Методы, включающие превращение тритиевой воды в легко регистрируемые газы подходят для количественного анализа в стационарных условиях, но из-за высокой инерционности всего процесса не годятся для измерения нестационарных концентраций (как этого требуют методы измерения влагопроницаемости, термодесорбционной спектроскопии и др.

4.5 Экспрессный анализ смесей радиоактивных газов и паров

Анализ смесей газов и паров обычно проводят с помощью радиохроматографа. Однако этот метод требует отбора проб и достаточно большого времени анализа. Для анализа смесей газов с быстро меняющейся концентрацией такой способ абсолютно не применим.

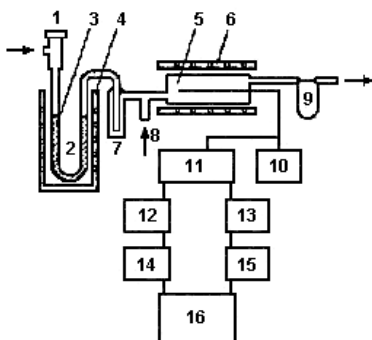


Рис. 26. Блок-схема установки для экспрессного анализа смесей радиоактивных газов и паров: 1 - система ввода газовой смеси, 2 - колонка, 3 -наполнитель, 4 - внешний нагреватель колонки, 5 - проточный пропорциональный счетчик, 6 -

нагреватель, 7 - ловушка для непрореагировавших паров, 8 - система ввода гасящей добавки, 9 - реометр, 10 - высоковольтный стабилизатор ВС-22, 11 - усилитель УШ-2, 12 и 13 - блоки дифференциальных дискриминаторов БД-7, 14 и 15 - измерители скорости счета ИСС-3, 16 – многоточечный электронный потенциометр ЭПП-09 М2.

Для экспрессного анализа нестационарных смесей двух радиоактивных газов, меченых радионуклидами с разными схемами распада, можно применить проточный пропорциональный счётчик, работающий в спектроскопическом режиме.

Блок-схема системы регистрации приведена на **Рис. 26**. Установка состоит из системы ввода газовой смеси (1), системы безынерционного перевода (в случае необходимости) компонентов газовой смеси в удобную для регистрации форму (система представляла собой колонку (2) с наполнителем (3) и внешним нагревателем (4)), проточного пропорционального счетчика из нержавеющей стали (5) с нагревателем (6) (нагрев детектора предотвращает сорбцию стенками счетчика регистрируемых газов), ловушки для непрореагировавших паров (7), системы ввода гасящей добавки (8), реометра для измерения общего потока газа (9) и электрометрической системы регистрации.

При анализе смеси газов обычно нет необходимости использовать колонку (2). В случае паров, которые могут изменить счетную характеристику счетчика, последние надо переводить в удобную для регистрации форму (например, пары органических веществ, меченных по углероду, - в CO_2 , воду - в H_2 или C_2H_2 и т. д.). Условия перехода должны исключать сорбцию, быть практически безынерционными и давать высокую степень прекращения паров.

Электрометрическая система регистрации для спектроскопического анализа импульсов, поступающих с проточного пропорционального счетчика, состоит из усилителя (11), двух блоков дифференциальных дискриминаторов (12, 13), измерителей скорости счета (14, 15), многоточечного электронного потенциометра (16) и высоковольтного стабилизатора – блока питания счётчика.



4.6 Промышленные приборы

Среди промышленных приборов для измерения радиоактивных газов прежде всего упомянем передвижной монитор радиоактивных газов - PGM102, представляющий собой мобильную станцию для мониторинга/отбора проб радиоактивных инертных газов, аэрозолей, йода и трития в газообразных средах. Поступающая проба газа проходит сначала через сдвоенный угольный фильтр и через бумажный фильтр толщиной 0.3 микрона, устраняющие из пробы взвешенные в воздухе частицы. Затем проба поступает в измерительную камеру объемом 8.3 литра без защиты, в которой используется сдвоенный сцинтилляционный детектор (пластмассовый сцинтиллятор и кристалл ВГО). Кристалл ВГО формирует сигнал от гамма-излучения с более затянутым импульсом, благодаря чему он опознается предусилителем и используется в качестве компенсационного сигнала для вычитания гамма-фона. Блок управления и индикации обрабатывает сигналы детектора, поступающие с предусилителя, и данные с других датчиков, обеспечивая вывод информации в реальном времени на цифровой дисплей и выдачу сигналов тревоги. Он также работает в качестве блока управления и индикации для систем отбора проб. В станции мониторинга радиоактивных газов PGM102 предусмотрены независимые системы отбора пробы, обеспечивающие отбор проб для проведения в лабораторных условиях количественного анализа активности трития, йода, аэрозолей и инертных газов. Управление расходом воздуха канала мониторинга и канала отбора проб и его измерение осуществляется контроллерами массового расхода воздуха, что позволяет вычислять концентрацию активности в газообразных средах. В PGM102 используются несколько стандартных модулей, объединенных в единую систему и смонтированных на прочной тележке. Все подсистемы мониторинга и отбора проб имеют необходимые клапаны, расходомеры, быстросъемные муфты и соединительные трубки, обеспечивающие удобство работы на объекте без потери чувствительности и точности отдельных приборов, входящих в состав системы. Персонал в защитной одежде может в любой момент переместить станцию в выбранную точку, выполнить электрические и пневматические соединения, и включить функции мониторинга за время, существенно меньшее, чем требуется для разворачивания отдельных систем мониторинга и отбора проб.



Интеллектуальный портативный радиометр РКБ-05П, с жидким сцинтиллятором, предназначен для оперативного контроля трития, углерода-14, фосфора-32 в пробах воздуха и воды, в том числе и на месте отбора проб. Принцип действия прибора основан на предварительном селективном отборе проб трития из воздуха или воды в специальные кюветы с пленочным сцинтиллятором или в сосуды с жидким сцинтиллятором - с последующим измерением их активности.

Прибор содержит три основных узла, размещенных в кейсе: измерительную камеру с узлом смены проб без выключения прибора - для обеспечения высокой

стабильности; высокочувствительный сцинтилляционный блок детектирования из двух ФЭУ, включенных в схему совпадений - антисовпадений с вычитанием шумов ФЭУ и амплитудно-временным анализом импульсов; интеллектуальное контрольно-измерительное устройство на микропроцессоре для автоматической обработки и представления результатов и погрешности измерений на дисплее с вычитанием внешнего фона, хранением результатов измерений и их передачи в ПК по интерфейсу.

Достоинства радиометра: высокая чувствительность при малых размерах и массе, что обеспечивает возможность проведения оперативного мониторинга при отборе проб на месте; возможность измерения жидких и воздушных проб; возможность измерения кроме трития проб других радионуклидов; компактность и небольшая масса переносного прибора; универсальность прибора, обеспечивающая высокочувствительный контроль трития в воздушных и водных пробах; наличие сетевого и аккумуляторного питания; возможность развития методов и прибора для контроля других нуклидов и проб (например, аэрозольных фильтров в геометрии 4π); селекция трития от других нуклидов при отборе, подготовке проб (сорбция трития пленочным детектором из воздуха; конденсация или перегонка водных проб и т.п.); автоматическое вычитание внешнего гамма-фона при измерениях; сочетание высокочувствительной схемы совпадений - антисовпадений для детектирования трития и интеллектуальной схемы обработки результатов измерений на программируемом заменяемом микропроцессоре серии Z; автоматическое измерение и представление на жидкокристаллическом дисплее результатов и погрешности измерения с их обновлением через 16 с; запоминание 32 результатов измерений с передачей данных по интерфейсу при подсоединении к ПК; возможность многократного использования пленочного сцинтиллятора с его обогащением тритием за счет сорбции за 30-40 мин (при измерении минимальных активностей) и десорбцией за 60 мин; возможность поставки специальной вычислительной программы для обработки результатов измерений.

Радиометр трития низкофоновый РЖБ-Н2 с жидкостным сцинтилляционным детектором, малошумящим ФЭУ и пассивной защитой предназначен для контроля содержания трития в объектах окружающей среды на территориях, прилегающих к атомным станциям.



Монитор трития TAM_100D предназначен для непрерывного мониторинга воздуха на наличие трития. Его можно устанавливать как непосредственно в контролируемой зоне, так и на расстоянии, отбирая пробу воздуха через соответствующий шланг длиной 30 м. Прибор построен на основе проточной ионизационной камеры. Для прокачки воздуха через камеру в нем используется насос с постоянной производительностью и проточная система. Активность трития или инертных газов определяется путем измерения ионизации в камере. Для учета вклада фонового γ -излучения имеется отдельная герметичная компенсационная ионизационная камера того же объема. Тем самым обеспечивается автоматическое вычитание γ -фона и радона. После

электрического вычитания фонового сигнала чистый ток преобразуется полупроводниковым электрометром в напряжение, пропорциональное концентрации. Сверхчувствительный полупроводниковый электрометр обеспечивает измерение предельно низких концентраций трития а также инертных газов. Предназначен для перчаточных боксов, атомных электростанций, нейтронных генераторов, циклотронов и ускорителей.

Установка радиометрическая УДГБ-01 на основе ионизационной камеры обеспечивает непрерывное измерение, индикацию на встроенном индикаторе и передачу по информационной сети значения объемной активности радиоактивных газов, включая тритий и углерод-14. Блоки детектирования установки могут быть как встроенными, так и выносными. Назначение: измерение объемной активности β -излучающих инертных газов (аргон, криптон, ксенон), а также газов, содержащих тритий и углерод-14 в воздухе рабочих помещений и вентиляционных системах.