

УДК 539.1.07+519.245+519.254

А. И. ЖУКОВСКИЙ¹, К. МОГИ², С. А. КУТЕНЬ³

ИЗМЕРЕНИЕ РАДИОАКТИВНОСТИ ПОЧВ МЕТОДОМ IN SITU

¹Научно-производственное унитарное предприятие «АТОМТЕХ»,
Минск, Беларусь, e-mail: alexzhukovski@gmail.com,

²Радиационные решения К°, Сендай, Япония,

³Научно-исследовательский институт ядерных проблем БГУ, Минск, Беларусь

Обсуждаются результаты моделирования методом Монте-Карло процесса in situ измерений с помощью сцинтилляционного детектора загрязненной радионуклидами цезия почвы. Изучена зависимость функций отклика детектора для радионуклидов ¹³⁴Cs и ¹³⁷Cs от глубины загрязнения. Показана возможность определения толщины загрязненного слоя почвы при использовании метода in situ, без проведения предварительного отбора и анализа проб.

Ключевые слова: спектрометр, энергетическое распределение импульсов, in situ, толщина загрязненного слоя почвы.

A. I. ZHUKOUSKI¹, K. MOGI², S. A. KUTSEN³

IN SITU SOIL RADIOACTIVITY MEASUREMENT

¹SPE «ATOMTEX», Minsk, Belarus, e-mail: alexzhukovski@gmail.com,

²Rad-Solutions Co., Ltd., Sendai, Japan,

³Research Institute for Nuclear Problems of Belarusian State University, Minsk, Belarus

The results of Monte Carlo simulations of measurement of uniformly in-depth contaminated with Cs nuclides soil using scintillation detector in situ measuring geometry have been discussed. The dependence of detector response functions on contamination depth is studied for nuclides ¹³⁴Cs and ¹³⁷Cs. Using the in situ methodology has shown the possibility of determining the depth of Cs nuclides distribution in soil without a preliminary sampling and analysis.

Keywords: spectrometer, gamma-ray spectra, in situ, contamination depth.

Введение. Мониторинг окружающей среды (в частности, определение загрязнения почв в результате радиоактивных выпадений) является обязательным условием системы обеспечения радиационной безопасности при нормальных условиях эксплуатации атомных электростанций, а также в случае возникновения внештатных ситуаций на предприятиях ядерного топливного цикла.

В настоящее время средства измерений, позволяющие проводить радиационный контроль почв, преимущественно лабораторные (стационарные). Определение плотности радиоактивных выпадений для оценки и прогнозирования радиационной обстановки загрязненных территорий на основе отбора и подготовки представительных проб почв с последующим их измерением на стационарных спектрометрах имеет ряд существенных недостатков, связанных, в первую очередь, с высокой вероятностью возникновения случайных и систематических ошибок [1, 2].

Использование портативных и легких спектрометров с возможностью проведения измерений методом in situ позволяет быстро оценить удельную активность контролируемых радионуклидов и плотность загрязнения с необходимой точностью того или иного участка почвы [3].

Основным условием возможности применения метода in situ при обследовании загрязненных территорий является наличие априорной информации об источнике γ -излучения (радионуклидный состав, толщина загрязненного слоя почвы, размеры загрязненного участка почвы, т. д.). Необходимая информация может быть получена как предварительно, так и непосредственно в процессе измерения.

В данной работе представлены основные результаты моделирования переноса γ -излучения из почвы к сцинтилляционному детектору методом Монте-Карло и описание ключевых моментов методики определения основных параметров геометрии измерения – толщины загрязненного слоя и размера загрязненного участка почвы без проведения предварительного отбора и анализа проб.

Материалы и методы. Для получения функций отклика спектрометра в заданных геометриях измерения разработаны с применением метода Монте-Карло модели устройства детектирования спектрометра и источника γ -излучения (загрязненной почвы) с различными толщинами загрязненного слоя почвы радионуклидами ^{134}Cs и ^{137}Cs и размерами загрязненного участка почвы. При измерениях активности радионуклидов методом *in situ* размер участка почвы определяется значением эффективного радиуса – радиуса загрязненного участка почвы, который формирует более 90 % функции отклика спектрометра для определенной толщины загрязненного слоя почвы.

Для оптимизации параметров модели источника γ -излучения дополнительно использовался аналитический метод, позволивший оценить значения эффективного радиуса для различных толщин загрязненного слоя почвы (табл. 1) [4].

Т а б л и ц а 1. Эффективный радиус источника γ -излучения

Толщина загрязненного слоя почвы D , см	Относительное отклонение показаний детектора от истинного значения β , % ¹		
	3	5	10
	Эффективный радиус участка почвы R , см		
2	115	98	76
5	83	71	55
10	71	60	47
15	64	55	42

¹ Истинное значение – отклик спектрометра при измерении загрязненного участка почвы условно бесконечного радиуса.

Математическое моделирование методом Монте-Карло. Для численного моделирования методом Монте-Карло использовалось программное обеспечение MCNP (Monte-Carlo N-Particle Transport, Los Alamos National Laboratory, USA) версии 4A [5]. На начальном этапе для верификации модели спектрометра применялись образцовые спектрометрические γ -источники типа ОСГИ-3 с γ -излучающими радионуклидами ^{134}Cs и ^{137}Cs . При эксперименте и моделировании методом Монте-Карло источники располагались на расстоянии 5 см от торцевой поверхности контейнера с блоком детектирования.

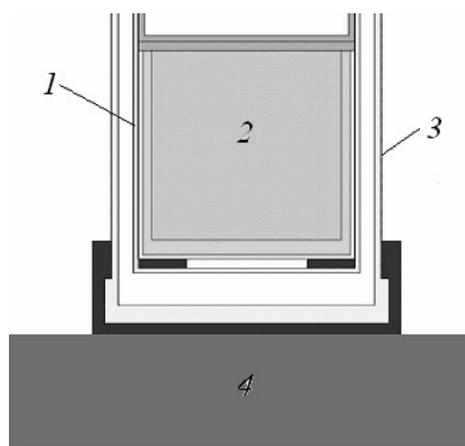


Рис. 1. Модель устройства детектирования и почвы в геометрии измерения *in situ*: 1 – корпус блока детектирования; 2 – детектор NaI(Tl); 3 – термоударопрочный контейнер; 4 – почва

Отклонение амплитуд пиков полного поглощения (ППП) γ -излучения с энергией 661,7 кэВ для ^{137}Cs , 597,4 и 796,4 кэВ для ^{134}Cs на уровне 2 % (погрешность ОСГИ-3 ± 5 %) отражает высокую степень соответствия модели Монте-Карло физическому образцу спектрометра.

Для определения функции отклика устройства детектирования к присутствующим в почве техногенным изотопам ^{134}Cs , ^{137}Cs и природным радионуклидам ^{40}K , ^{238}U (^{226}Ra), ^{232}Th использовалась модель для почв с различными толщинами почвенного слоя, загрязненного техногенными радионуклидами. На рис. 1 показаны сечения компонент системы источник – детектор, полученные из кода MCNP.

Значение плотности почвы принято $1,3 \text{ г/см}^3$. Элементный состав, используемый в моделировании переноса γ -излучения в геометрии измерения *in situ*, представлен в табл. 2 [4].

Таблица 2. Элементный состав почвы

Химический элемент	Si	Al	Fe	Ca	Mg	K	Na	O	P	S	C	H	N
Массовая доля, %	24,32	5,07	1,04	0,31	0,62	1,21	1,08	62,18	0,03	0,07	3,53	0,38	0,19

Результаты моделирования методом Монте-Карло позволили подтвердить и в некоторых случаях скорректировать значения эффективных радиусов источника γ -излучения, вычисленных с использованием аналитического подхода (табл. 1). Модели устройства детектирования спектрометра и загрязненного участка почвы позволили получить функции отклика спектрометра в геометрии измерения *in situ* в виде расчетных спектров для различных толщин загрязненного слоя почвы радионуклидами ^{134}Cs и ^{137}Cs , являющихся составной частью математического обеспечения спектрометра.

При использовании данных аналитического подхода и моделирования определена функциональная зависимость эффективного радиуса участка почвы R (см) от толщины загрязненного слоя почвы D (см), в которой распределены радионуклиды ^{134}Cs и ^{137}Cs :

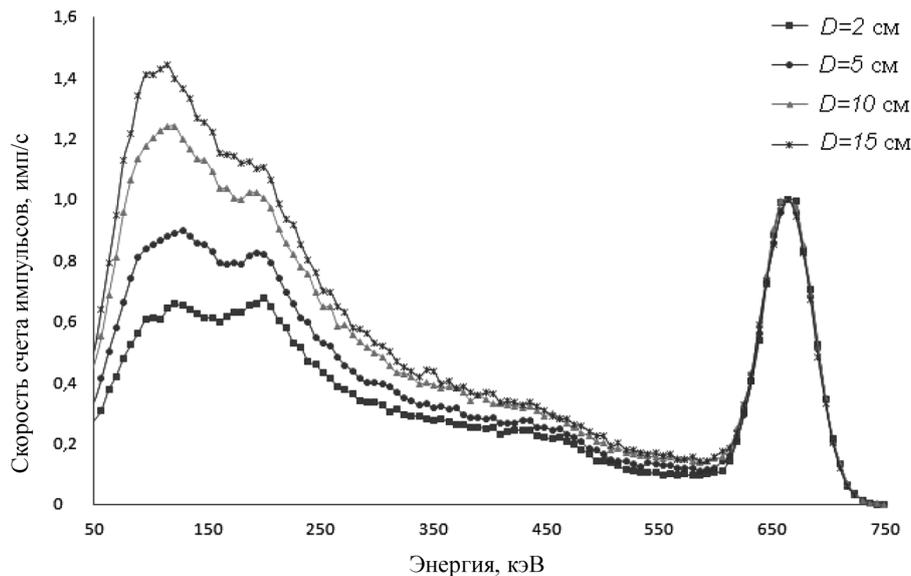
$$R(D) = 0,397D^{-0,193}. \quad (1)$$

Она позволяет проводить измерения удельной активности радионуклидов ^{134}Cs и ^{137}Cs или плотности загрязнения почвы данными радионуклидами, а также оценивать их удельную активность на заданную толщину почвенного слоя.

На рис. 2 представлены расчетные спектры, полученные путем моделирования переноса γ -излучения из источника в детектор методом Монте-Карло при условии равномерного распределения радионуклида ^{137}Cs в заданном слое почвы с учетом эффективного радиуса источника γ -излучения. Для наглядности спектры нормированы на единицу в ППП с энергией γ -излучения 661,7 кэВ.

Математические методы обработки энергетического распределения γ -квантов. Для решения задач радиационного контроля и мониторинга почв с использованием метода *in situ* разработано математическое обеспечение на основе спектрометрического анализа энергетического распределения γ -квантов (далее спектр) в процессе измерения активности радионуклидов ^{134}Cs , ^{137}Cs , ^{40}K , ^{238}U и ^{232}Th в заданной геометрии измерения.

Толщина загрязненного слоя почвы радионуклидами ^{134}Cs и ^{137}Cs является одним из основных параметров геометрии измерения при использовании метода *in situ*. Эта величина не является константой, а зависит от времени, прошедшего с момента радиоактивного загрязнения, механического воздействия на почву (вспашка, рекультивация, рыхление), типа почв и т. д. Таким

Рис. 2. Расчетные спектры радионуклида ^{137}Cs

образом, для корректного измерения активности ^{134}Cs и ^{137}Cs в почве непосредственно в месте залегания необходимо знать данный параметр при оценке геометрии измерения, в частности объема почвы, формирующего более 90% функции отклика детектора.

Процедура анализа аппаратного спектра γ -излучения (спектра, непосредственно измеренного с использованием спектрометра) с целью определения толщины загрязненного слоя почвы заключается в поэтапном решении следующих задач:

вычет фоновой составляющей, обусловленной собственным фоном устройства детектирования и космическим излучением;

поиск и идентификация ППП естественных и техногенных радионуклидов [6, 7];

определение параметров найденных ППП (положение центроиды пика, полная ширина пика на полувысоте, площадь пика за вычетом фонового пьедестала) [6, 7];

построение теоретических спектров с учетом идентифицированных радионуклидов и расчетных нормированных спектров для заданных толщин загрязненного слоя почвы техногенными радионуклидами;

определение невязки каждого теоретического спектра в заданном энергетическом диапазоне относительно аппаратного спектра;

нахождение функции, аппроксимирующей невязку, и оценка реальной толщины загрязненного слоя почвы техногенными радионуклидами.

Исключая фоновую составляющую, обусловленную собственным фоном устройства детектирования и космическим излучением из сигнала, аппаратный спектр $F(E)$ представляем таким образом:

$$F(E) = F'(E) + \Delta^D(E), \quad (2)$$

где $\Delta^D(E)$ – невязка теоретического спектра относительно измеренного аппаратного спектра в виде некоторого энергетического распределения импульсов; $F'(E)$ – теоретический спектр, полученный с использованием расчетных спектров по результатам идентификации радионуклидного состава измеряемого участка почвы:

$$F'(E) = \sum_i G_i^D(E) K_i, \quad (3)$$

где $i = 1, 2, 3, \dots, n$ – количество идентифицированных радионуклидов в почве; $G_i^D(E)$ – нормированный на единицу времени и активности расчетный спектр i -го радионуклида для загрязненного почвенного слоя толщиной D , полученный путем моделирования методом Монте-Карло; K_i – коэффициент, характеризующий геометрию измерения и активность i -го радионуклида. Он определяется по результатам поиска, идентификации и анализа ППП аппаратного спектра по алгоритмам, описанным в [6, 7].

Выделяя из аппаратного спектра фоновую компоненту, обусловленную присутствием в почве естественных радионуклидов, получаем суммарный отклик спектрометра $F_{\text{Cs}}(E)$ к радионуклидам ^{134}Cs и ^{137}Cs в искомом почвенном слое. Поскольку изотопы цезия химически не различаются относительно друг друга, механизм их распределения в почвенном профиле будет иметь одинаковый характер. Используя выражения (2), (3), суммарный отклик спектрометра $F_{\text{Cs}}(E)$ представляем в следующем виде:

$$F_{\text{Cs}}(E) = G_{^{134}\text{Cs}}^D(E) K_{^{134}\text{Cs}} + G_{^{137}\text{Cs}}^D(E) K_{^{137}\text{Cs}} + \Delta^D(E), \quad (4)$$

где $G_{^{134}\text{Cs}}^D(E)$ и $G_{^{137}\text{Cs}}^D(E)$ – нормированные на единицу времени и активности расчетные спектры радионуклидов ^{134}Cs и ^{137}Cs , распределенных в почвенном слое заданной толщины D .

Коэффициенты $K_{^{134}\text{Cs}}$ и $K_{^{137}\text{Cs}}$ определяются по результатам аппроксимации ППП с энергиями γ -излучения 796,4 и 661,7 кэВ соответственно в суммарном отклике спектрометра $F_{\text{Cs}}(E)$.

Представлен результат использования выражений (1)–(4) в виде теоретических спектров для заданных толщин загрязненного почвенного слоя D , равных 2, 5, 10 и 15 см (рис. 3).

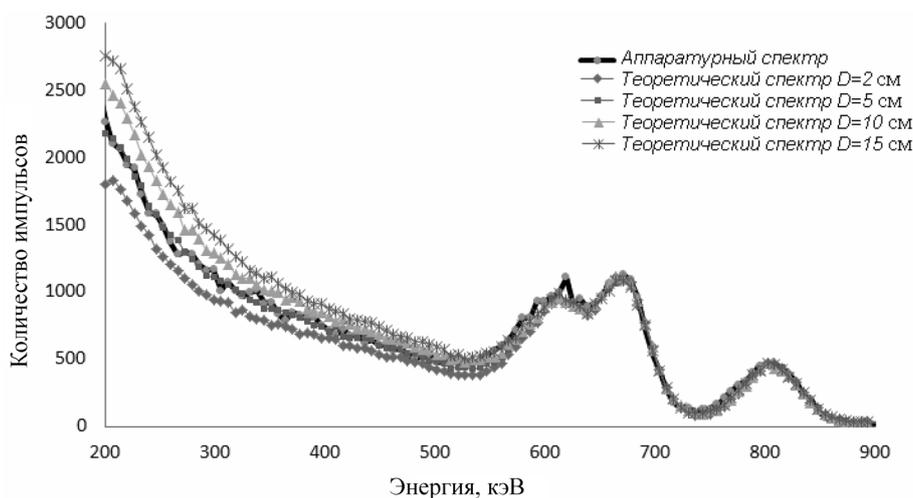


Рис. 3. Аппаратурный и теоретические спектры с радионуклидами ^{134}Cs и ^{137}Cs . Получены на участке почвы с глубиной залегания радионуклидов $D = 5$ см, расположенном в регионе Тохоку (Япония)

Для определения толщины загрязненного слоя почвы радионуклидами ^{134}Cs и ^{137}Cs используется вспомогательная линейная функция

$$H(D) = a + bD. \quad (5)$$

Коэффициенты a и b определяются путем аппроксимации методом наименьших квадратов невязок $\Delta^D(E)$ для толщин загрязненного почвенного слоя D , равных 2, 5, 10 и 15 см.

На рис. 4 приведены вспомогательные функции $H(D)$, полученные в результате анализа нескольких аппаратурных спектров в соответствии с предложенным выше методом. Аппаратурные спектры измерялись на участках почвы, расположенных в регионе Тохоку (Япония) на территории, подвергшейся радиоактивному загрязнению в результате аварии на АЭС Фукусима. Толщина загрязненного почвенного слоя D_s определялась из условия $H(D_s) = 0$.

В [2] представлены результаты сравнения измерений методом *in situ* с данными измерения отобранных представительных проб почвы на спектрометре на основе детектора из особо чистого германия. В процессе измерения удельной активности контролируемых радионуклидов в почве автоматически определялась толщина загрязненного почвенного слоя, значение которой использовалось для корректировки удельной активности на заданный слой почвы. Отклонения не

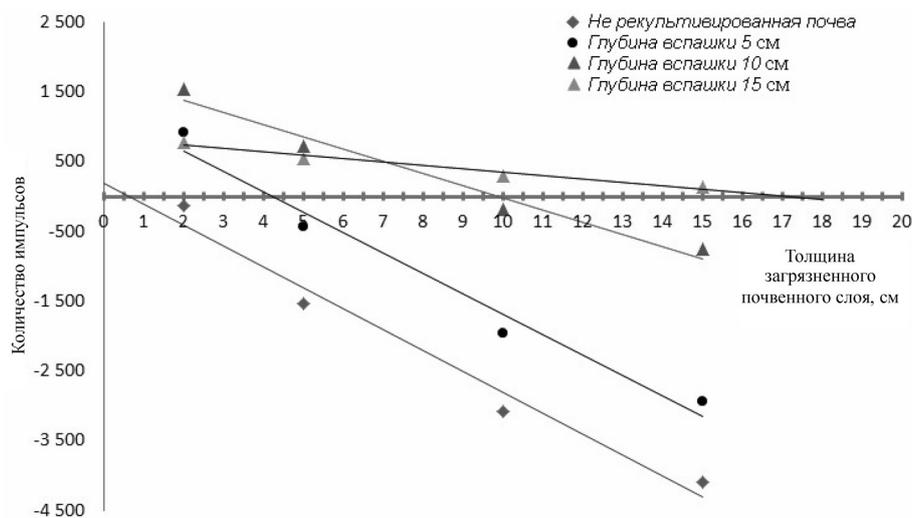


Рис. 4. Результаты аппроксимации невязок с использованием выражения (5) для различных толщин загрязненного почвенного слоя радионуклидами ^{134}Cs и ^{137}Cs

более $\pm 10\%$ значений удельной активности ^{137}Cs , полученных с применением метода *in situ*, относительно показаний, полученных с применением пробоотбора, подтверждают корректную работу метода определения толщины загрязненного почвенного слоя радионуклидами в процессе измерения.

Испытания университета Фукусимы совместно с японской сельскохозяйственной ассоциацией на фруктовых и рисовых полях (более 450), расположенных в регионе Тохоку, с различным распределением контролируемых радионуклидов в почвенном профиле, подтвердили корректную работу данного метода и показали необходимость определения толщины загрязненного почвенного слоя при измерении активности радионуклидов методом *in situ* [8].

Заключение. Использование результатов взаимодополняющих теоретических и экспериментальных исследований позволило определить функции отклика спектрометра в требуемых геометриях измерения к заданным радионуклидам. Предложенные функциональные зависимости позволяют вычислить основные параметры геометрии измерения (толщину загрязненного почвенного слоя и эффективный радиус источника γ -излучения) в процессе измерения активности радионуклидов ^{134}Cs и ^{137}Cs без отбора проб.

Список использованной литературы

1. Грубич, А. О. Радиоактивное загрязнение почв. От исследований Чернобыльских выпадений к контролю АЭС / А. О. Грубич. – Гомель: Институт радиологии, МЧС, Беларусь, 2010.
2. Портативный гамма-спектрометр МКС-АТ6101ДР для измерения методом *in situ* / А. И. Жуковский [и др.] // Метрология и приборостроение. – 2015 – № 3 (70). – С. 9–12.
3. Гамма-спектрометр: пат. 2657 Респуб. Беларусь, МКПО (9) 10–05 / В. Д. Гузов, А. М. Бирило, А. И. Жуковский, В. А. Чирикало, А. Н. Семеняко, Е. В. Быстров; заявитель НПУП «АТОМТЕХ» ОАО «МНИПИ» – f 20120231; заявл. 07.08.2012; опубл. 28.02.2013 // Афіцыйны бюл. Вынаходствы. Карысныя мадэлі. Прамысловыя ўзоры / Нац. цэнтр інтэлектуал. уласнасці. – 2013. – № 1 (90). – С. 255.
4. Оценка области влияния загрязненного участка почвы при решении задач радиационного мониторинга методом *in situ* / А. И. Жуковский [и др.] // Приборы и методы измерений. – 2014 – № 1 (8). – С. 119–124.
5. Bristmeister, J. F. Ed. MCNP- A general Monte Carlo N-particle transport code, Version 4A. / J. F. Bristmeister. // Report LA-12625-M. – Los Alamos, NM: Los Alamos National Laboratory, 1994.
6. Пассивный неразрушающий анализ ядерных материалов / Д. Райлли [и др.]. – М.: БИНОМ, 2000.
7. Спектрометр для измерения активности гамма-излучающих радионуклидов в легких взрослого человека. Часть II. Математическое обеспечение СКГ-АТ1316А / А. И. Жуковский [и др.] // Приборы и методы измерений. – 2013. – № 2 (7). – С. 5–11.
8. AT6101DR gamma-spectrometer for soil radiation control and monitoring by *in situ* as a result of Belarus and Japan cooperation in overcoming the consequences of the accident at Fukushima nuclear power plant / A. Zhukouski [et al.] // Проблемы прикладной спектрометрии и радиометрии: сб. докл. XIII междунар. совещ. – СПб., 2015. – С. 160–163.

Поступила в редакцию 17.11.2015