

Сравнительный анализ современных жидкостцинтилляционных спектрометров.

Малиновский С.В., Каширин И.А., Ермаков А.И., Тихомиров В.А., Соболев А.И.
ГУП Мос НПО «Радон», e-mail: smalinovsky@radon.ru

Введение.

К настоящему времени, для проведения полноценного радиоизотопного анализа проб, приборный парк современной аналитической лаборатории обязан включать жидкостцинтилляционные спектрометры. Это обусловлено, прежде всего, такими характеристиками жидкостцинтилляционного метода, недоступными другим методам радиационного анализа, как возможностью регистрировать бета-излучение с энергиями от 2 кэВ, высокой эффективностью регистрации (~100% для всех альфа-частиц и для бета-частиц с энергией >50 кэВ), возможностью отдельной регистрации бета- и альфа-излучения, а также возможностью проведения полноценной бета-спектрометрии, т.е. определения изотопного состава бета-излучателей. К сожалению, к последнему свойству, т.е. возможности бета-спектрометрического анализа жидкостцинтилляционных спектров, с нашей точки зрения – самому важному, подавляющее большинство мировых лабораторий относится с некоторым недоверием в основном из-за сложности реализации алгоритма расшифровки спектров. Тем приятней факт, что в этом случае российские лаборатории оказались менее инерционными, первыми оценили возможности ЖС-спектрометрии и ряд из них с успехом пользуются новой технологией.

Круг решаемых с использованием ЖС-спектрометрии задач очень широк и подробно представлен в наших докладах за предыдущие годы. Это:

- ◆ Радиоэкологические исследования, в том числе:
- ❖ мониторинг естественных (изотопы Ra, Rn, U, Th, ^{210}Pb , ^{210}Po ...) и техногенных (^3H , ^{90}Sr , ^{241}Pu) радионуклидов в объектах окружающей среды на фоновых уровнях - включает радиохимическую подготовку проб;
- ❖ экспресс-анализ (метод «скрининга» без радиохимической подготовки) различных радионуклидов в объектах окружающей среды при контроле выбросов и сбросов предприятий неядерного цикла – угольные, нефтяные, газовые месторождения, ТЭЦ;

❖ контроль техногенных радионуклидов в выбросах и сбросах предприятий ядерного цикла (^3H , ^{85}Kr , ^{89}Sr , ^{90}Sr , ^{99}Tc , ^{129}I , ^{234}U , ^{238}U , ^{241}Pu) - включает радиохимическую подготовку проб.

◆ Радиационная гигиена и медицина, в том числе:

❖ радиационный контроль источников питьевого водоснабжения: экспресс-анализ (без радиохимической подготовки) содержания альфа- и бета- излучателей с одновременным определением основных компонентов, а также анализ отдельных нормируемых радионуклидов (^{90}Sr , ^{226}Ra , ^{228}Ra , ^{210}Pb , ^{210}Po , ^{234}U , ^{238}U) - включает радиохимическую подготовку проб;

❖ прецизионный анализ содержания радона и торона в воздухе помещений;

❖ контроль содержания в воздухе, а также внутреннего содержания различных радионуклидов персонала на предприятиях ядерного цикла;

❖ контроль радиоизотопных трассеров в медицинских и биологических исследованиях

◆ Технологии, в том числе:

❖ контроль содержания различных радионуклидов (учитывая специфику предприятия) в технологических средах на предприятиях ядерного цикла - экспресс-анализ методом «скрининга» без радиохимической подготовки или с минимальной упрощенной подготовкой;

❖ контроль выбросов и сбросов предприятий ядерного цикла и исследовательских организаций;

❖ контроль качества изотопной продукции.

Особенно следует отметить задачи, не решаемые, или решаемые очень сложно другими методами. Это, например, определение содержания ^{241}Pu в пробах как радиохимически выделенных фракций, так и при экспресс-анализе, определение изотопного состава Sr-фракции и т.д.

Российский парк жидкостинтилляционных приборов в последнее время испытывает значительный рост. Это связано со многими причинами, главные из которых улучшение финансирования лабораторий и появление бюджетных ЖС-спектрометров. Немаловажной причиной является также понимание руководителями лабораторий необходимости использования таких приборов. Но часто ЖС-спектрометры покупаются

совершенно в «тёмную», исходя только из цены и (или) рекламных материалов, иногда недостаточно полно описывающих действительность.

Являясь единственными производителями и поставщиками спектрометрического программного обеспечения жидкостинтилляционных спектрометров, имея большой собственный парк и большой опыт работы практически на всех современных коммерческих жидкостинтилляционных спектрометрах, мы предлагаем их сравнительный анализ с целью помощи в выборе и оценке того, что от него можно ожидать. Анализ основан, главным образом, на результатах наших собственных измерений. Основной акцент, очевидно, будет делаться на спектрометрические возможности приборов. Прежде всего, оцениваются спектрометрические и потребительские качества приборов, такие как эффективность регистрации, разрешение, стабильность, удобство работы и т.д.

Спектрометры.

В анализ вошли все продаваемые на территории СНГ и ближнего зарубежья ЖС-спектрометры.

Начнём с единственного спектрометра Российского производства СКС-07П-Б11(10) (рис.1). Изготовитель – фирма Грин Стар (GreenStar), Москва (www.greenstar.ru).



Рис.1. СКС-07П-Б11(10).

Блок детектирования комплекса реализован на основе двух фотоэлектронных умножителей (ФЭУ). Комплекс СКС-07П-Б10 комплектуется блоком детектирования УДБТ-002, изготовленным на основе ФЭУ-184 производства России. Комплект защиты изготовлен из свинца толщиной 20 мм. Комплекс СКС-07П-Б11 комплектуется блоком детектирования УДБТ-003, изготовленным на основе ФЭУ производства Японии. Комплект защиты изготовлен из вольфрама толщиной 50 мм.

Основные технические характеристики, заявленные на сайте производителя, полученные при использовании жидкого сцинтиллятора "Optiphase Hi Safe III" и пластиковых кювет, представлены в таблице:

	СКС-07П-Б10		СКС-07П-Б11	
	Эффективность регистрации	Фон	Эффективность регистрации	Фон
H-3	35%	42 имп/мин	60%	15 имп/мин
C-14	96%	90 имп/мин	98%	21 имп/мин
Sr+Y-90	99%	144имп/мин	99%	30 имп/мин

Цена приборов варьируется от \$3000 для самой простой комплектации СКС-07П-Б10 до \$13000 для СКС-07П-Б11. Комплекс СКС-07П-Б10 ориентирован на медицинские цели для определения количества единственного изотопа в пробе и не предназначен для решения спектрометрических задач. Хотя в качестве бюджетного жидкосцинтилляционного радиометра он вполне может рассматриваться. Мы не имели опыта работы с данной модификацией, в связи с чем, в сравнительном анализе использованы данные производителя.

Комплекс СКС-07П-Б11 является полноценным прибором с хорошими спектрометрическими характеристиками. В обзор мы включили спектрометры СКС, работающие в настоящее время в организациях городов Томск, Заречный и Северск.

Практически все остальные жидкосцинтилляционные спектрометры в России представляет одна фирма Pribori Oy (<http://www.pribori.com>), причём почти все приборы производства компании PerkinElmer. Начнем с серии Tri-Carb, производимой в США. Она представлена в настоящее время моделями Tri-Carb 2800TR, Tri-Carb 2900TR, Tri-Carb 3100TR, Tri-Carb 3170TR/SL (рис. 2), имеющими одинаковый внешний вид и

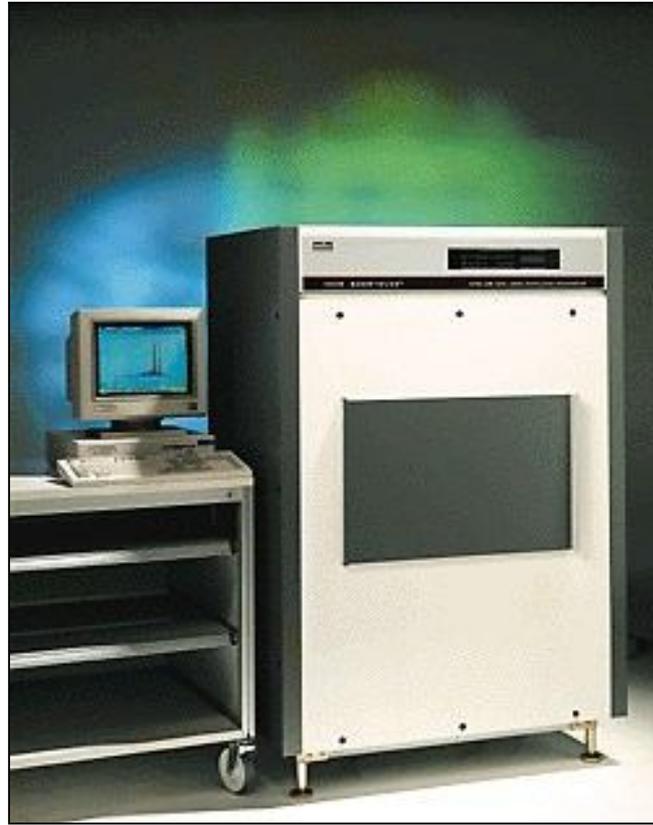
отличающиеся, в основном, набором дополнительных опций. В обзор включены приборы Tri-Carb 2800TR из Красноярска и работающие у нас в лабораториях Tri-Carb 3100TR, Tri-Carb 3170TR/SL и снятый с производства Tri-Carb 2550TR/RB.



Рис.2. Tri-Carb 3170TR/SL.

Следующий прибор производится на заводе Wallac в Финляндии, принадлежащем также концерну PerkinElmer - Quantulus 1220 (рис.3). Отличается прежде всего уникально низким фоном самыми большими весом и габаритами. Quantulus может работать в 2-х режимах – стандартном и низкофоновом (LowLevel). В обзоре использованы результаты наших измерений на приборе Российского научного центра "Курчатовский институт" в стандартном режиме. Данные по режиму LowLevel взяты с сайта производителя.

Ещё один прибор завода Wallac, к сожалению недавно также снятый с производства, но работающий на предприятиях России - Guardian 1414 (рис.4). В обзоре использованы результаты измерений на приборе Смоленской АЭС.



Puc.3. Quantulus 1220.



Puc.4. Guardian 1414.

И последний прибор, участвующий в сравнении, Triathler производства фирмы HIDEX, Финляндия. Прибор отличается малыми габаритами и весом, которые обусловлены малой пассивной защитой и использованием только одного ФЭУ. Как следствие, прибор обладает очень высоким фоном и плохой стабильностью, что сильно ограничивает его спектрометрические возможности. В обзор включены результаты измерений на приборах, работающих на ПСЭС, ЛАЭС и в нашей лаборатории. Прибор имеет два режима работы – с линейным и логарифмическим усилением, соответственно результаты приведены для обоих режимов.



Рис.5. Triathler.

Таким образом, в наш обзор попали практически все существующие жидкосцинтилляционные спектрометры. В него не вошли только спектрометры производства Beckman Coulter, Inc., USA и спектрометр PERALS® фирмы ORDELA, Oak Ridge, USA. Спектрометры Beckman не вошли по причине их недоступности для нас и отсутствия каких-либо данных производителя по их характеристикам. PERALS не вошёл в обзор по причине малой распространённости (имеется в России в единственном экземпляре – в нашей лаборатории) и ориентации исключительно на альфа-спектрометрию.

Критерии сравнения.

- Фон, B [имп./мин.]. Сравняется фон прибора в 3-х энергетических диапазонах:
 - в области спектра трития ^3H (0 - 20 кэВ),
 - в области спектра ^{14}C (0 - 160 кэВ),
 - всего спектра (~ 0 - 2000 кэВ).
- Эффективность регистрации ε [%]. Эффективность регистрации приведена для параметра тушения $t\text{SIE} \sim 600$ (в единицах измерения тушения, принятых для TriCarb) или $\text{SQP} \sim 860$ (в единицах, принятых для Quantulus), характерного для хорошо подготовленных к измерениям реальных проб. Данные, представляемые производителями относятся, как правило, к калибровочным источникам заводского изготовления с тушением $t\text{SIE} \sim 1000$, получить которое для реальных проб в лабораторных условиях невозможно.

Эффективность регистрации приведена для 4-х распространённых радионуклидов:

- ^3H ,
- ^{14}C ,
- ^{60}Co ,
- $^{90}\text{Sr}+^{90}\text{Y}$ в равновесии.

Выбор равновесных $^{90}\text{Sr}+^{90}\text{Y}$ обусловлен тем, что они перекрывают практически весь энергетический диапазон бета-излучения.

Выбор ^{60}Co обусловлен тем, что его бета-распад сопровождается испусканием гамма-квантов. В связи с этим, на эффективность регистрации таких радионуклидов сильно влияет схема активного подавления фона. В самых низкофоновых приборах (в нашем обзоре это Quantulus 1220 и Tri-Carb 3170TR/SL) сопровождающий бета-распад гамма-квант регистрируется схемой антисовпадений и отсекает полезный сигнал от бета-частицы, что приводит к значительному уменьшению эффективности регистрации.

- Показатель качества ε^2/B . Наиболее корректно характеризует чувствительность прибора, так как, в отличие от минимально детектируемой активности, не привязан ко времени измерения.
- Минимально детектируемая активность:

$$MДА \cong \frac{2\sqrt{2B}}{\varepsilon T} \sim \frac{2.8}{T\sqrt{\varepsilon^2/B}}$$

В формуле для расчёта МДА использованы упрощения, связанные с тем, что для ЖСС всегда $B \gg 1$.

- Энергетическое разрешение *FWHM* [%]. Зависит от тушения пробы и энергии излучения. Приводится для тушения tSIE ~600 и энергий бета-излучения E_β ~500 кэВ и альфа-излучения E_α ~5 МэВ. Из-за специфики регистрации бета- и альфа-излучений ЖС-спектрометрами на спектре эти излучения расположены в одной области.
- Тип усиления. Линейное или логарифмическое (рис.6).

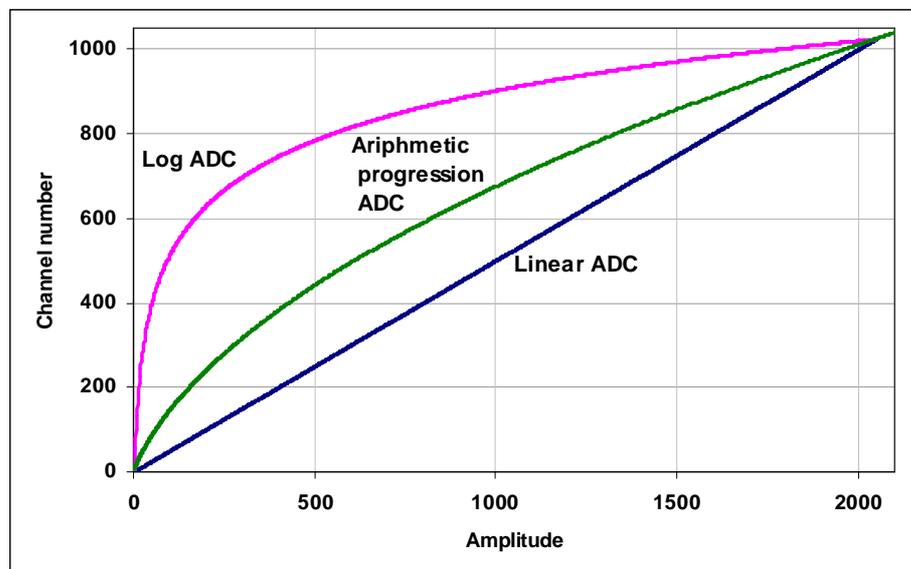


Рис.6. Зависимость номера канала от амплитуды входного сигнала для различных типов усиления или АЦП.

При логарифмическом усилении подробно представлена низкоэнергетическая часть спектра, в то время как высокоэнергетическая «сжата», что может затруднить спектрометрию радионуклидов с большими максимальными энергиями бета-спектров (рис.7).

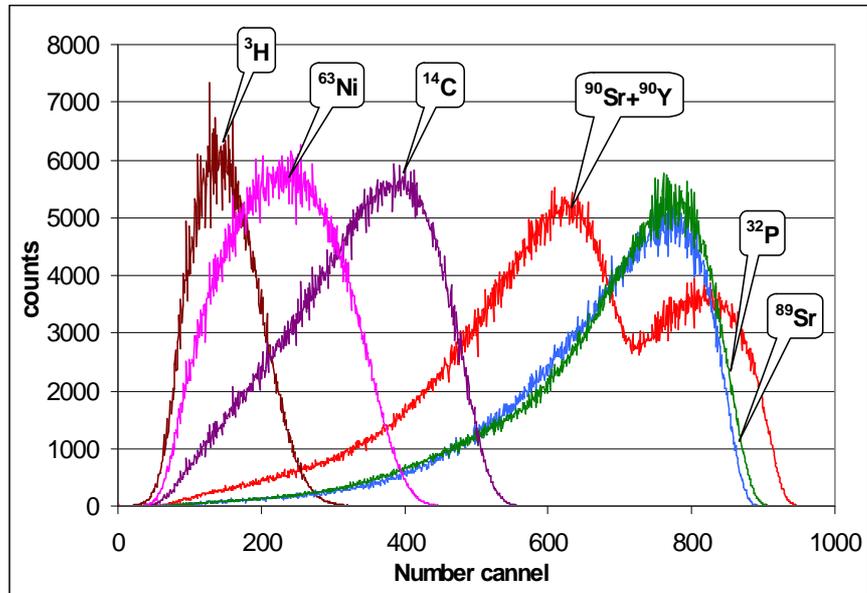


Рис.7.Спектры некоторых радионуклидов ЖСС с логарифмическим типом усиления.

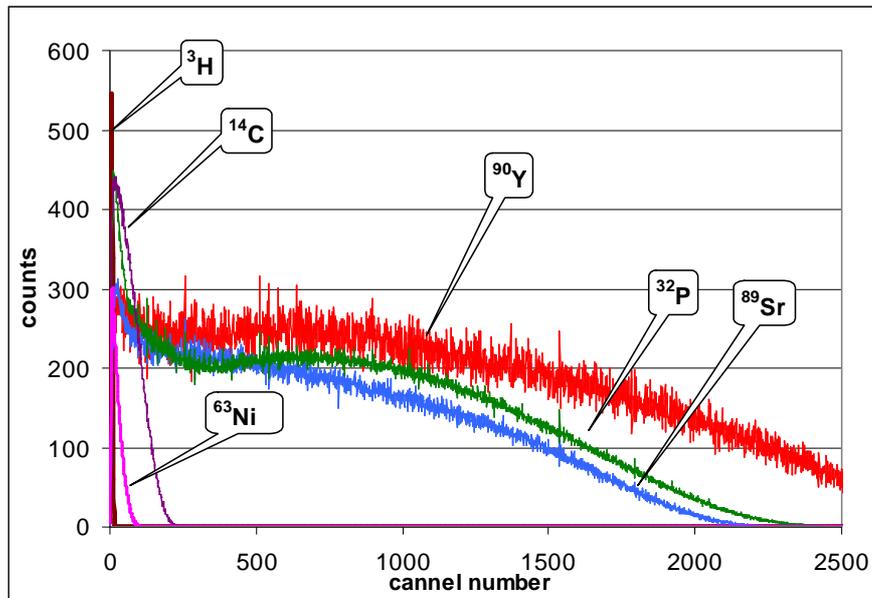


Рис.8.Спектры некоторых радионуклидов ЖСС с линейным типом усиления.

При линейном усилении (рис. 8) наоборот, подробно представлена высокоэнергетическая часть спектра, в то время как низкоэнергетическая «сжата». Тем не менее, избыточность числа каналов современных анализаторов позволяет сворачивать спектры в группы различной ширины, что позволяет изменять

информативность различных участков спектра. В частности, для приборов с линейным усилением мы используем сворачивание в группы по закону квазиарифметической прогрессии (рис. 6), что позволяет улучшить подробность низкоэнергетической области при сохранении подробности высокоэнергетической (рис.9).

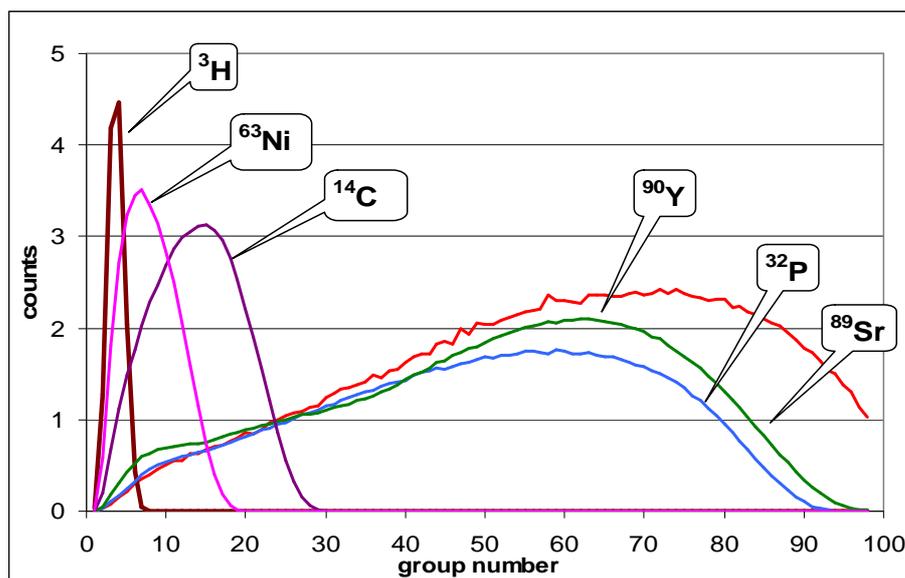


Рис.9. Спектры некоторых радионуклидов ЖСС с линейным типом усиления, свёрнутые в группы по квазиарифметическому алгоритму.

- Возможность альфа-бета разделения. Импульсы от альфа- и бета-частиц имеют отличающуюся форму, что, в принципе, позволяет проводить их разделение на стадии регистрации. Эта опция достаточно удобна при отдельной оценке интегральной активности альфа- и бета-излучателей. При проведении спектрометрии использование опции затруднительно, так как требует определения уровня дискриминации формы импульсов для каждой пробы, что увеличивает трудоёмкость анализа. Кроме того, оптимально установленный уровень дискриминации не позволяет корректно определить тип всех частиц, что вносит дополнительные погрешности в результаты измерений.
- Удобство обслуживания. Определяется двумя опциями:
 - возможность одновременной загрузки большого количества проб для последовательных измерений и

- автоматическое определение тушения пробы.

Первая опция важна при проведении большого количества рутинных измерений.

Что касается второй, то определение параметра тушения обязательно при любом, даже радиометрическом ЖС-анализе, так как от него зависит не только форма спектров, но и эффективность регистрации. Автоматическое определение тушения производится выдвиганием какого-либо источника гамма-излучения в область нахождения пробы и определение тушения по форме измеренного спектра комптоновских электронов, сгенерированных в пробе под действием гамма-квантов. В разработанном нами спектрометрическом программном обеспечении SpectraDec предусмотрена возможность определения тушения по аналогичному алгоритму для приборов без опции автоматического определения. Для этого достаточно проведения дополнительного измерения пробы с внешним источником гамма-излучения, помещаемым вручную вблизи пробы.

- Габариты и вес.
- Цена.

Фон.

Значения фона для вышеописанных приборов и условий представлены на рис.10. Для удобства приборы разбиты на 4 группы, соответствующие разным производителям. Из графиков видно, что фон примерно одинаков для приборов серии СКС и не низкофоновых вариантов TriCarb и Quantulus. Значительная пассивная защита Quantulus дополнительно позволила понизить фон в высокоэнергетической области. Очень неплохи показатели бюджетного Guardian.

Дополнительные системы подавления фона позволили в 2-3 раза понизить фон для приборов TriCarb и ещё более значительно для Quantulus.

Фоновые значения приборов Triathler, как и предполагалось, значительно выше при сильной нестабильности фона как во времени, так и для разных приборов.

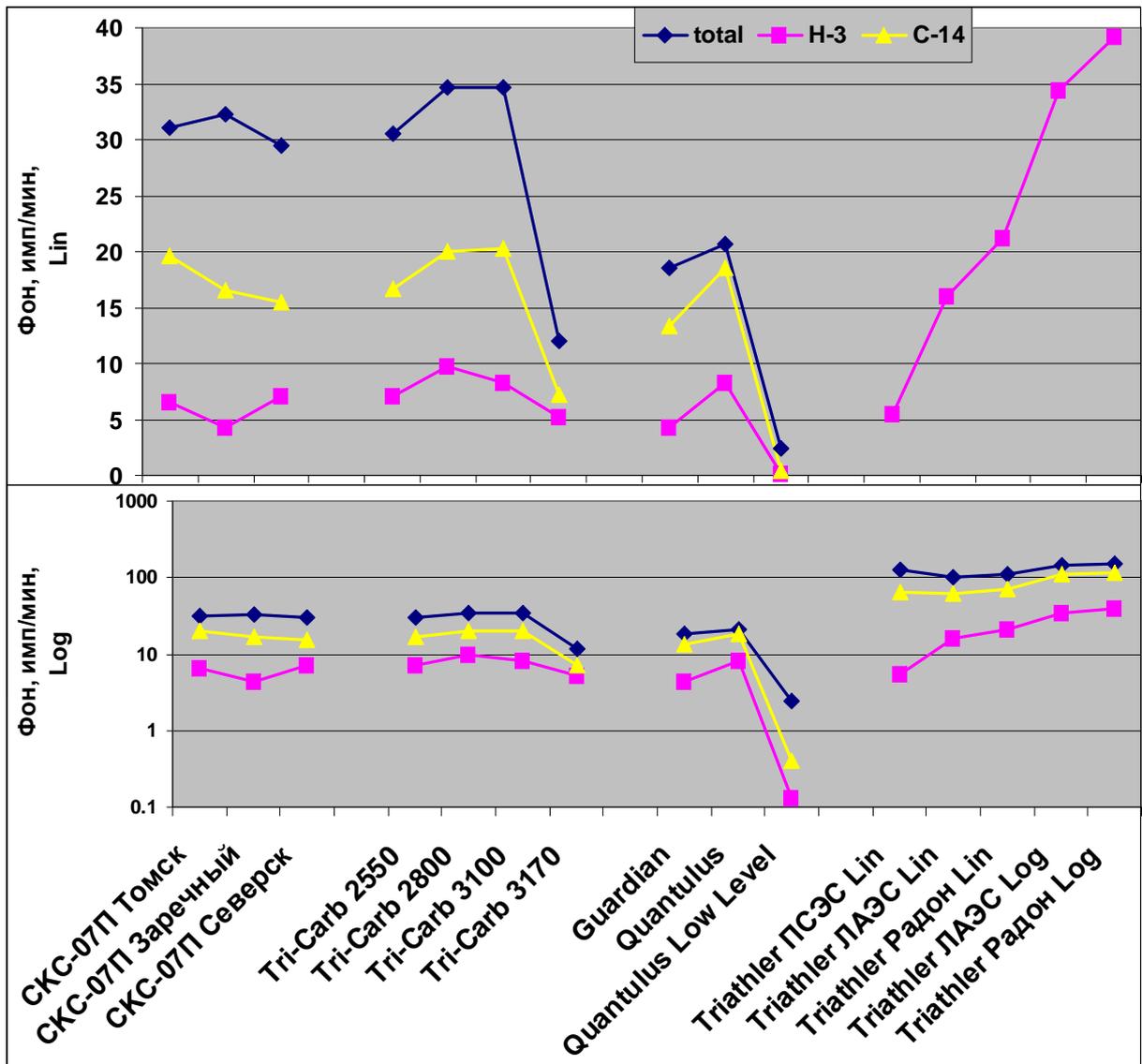


Рис.10. Фон.

Эффективность регистрации (рис.11).

Одной из важнейших свойств жидкосцинтилляционных приборов является 100%-я эффективность регистрации для альфа-излучения и бета-излучения с энергией более ≈ 50 кэВ. Отсюда все радионуклиды, большую часть спектра которых составляют электроны с энергией более 50кэВ имеют также практически 100%-ю эффективность регистрации.

Исключение составляют, как мы уже говорили, радионуклиды, бета-излучение которых сопровождается гамма-излучением при измерении в низкофоновом варианте TriCarb и низкофоновом режиме Quantulus.

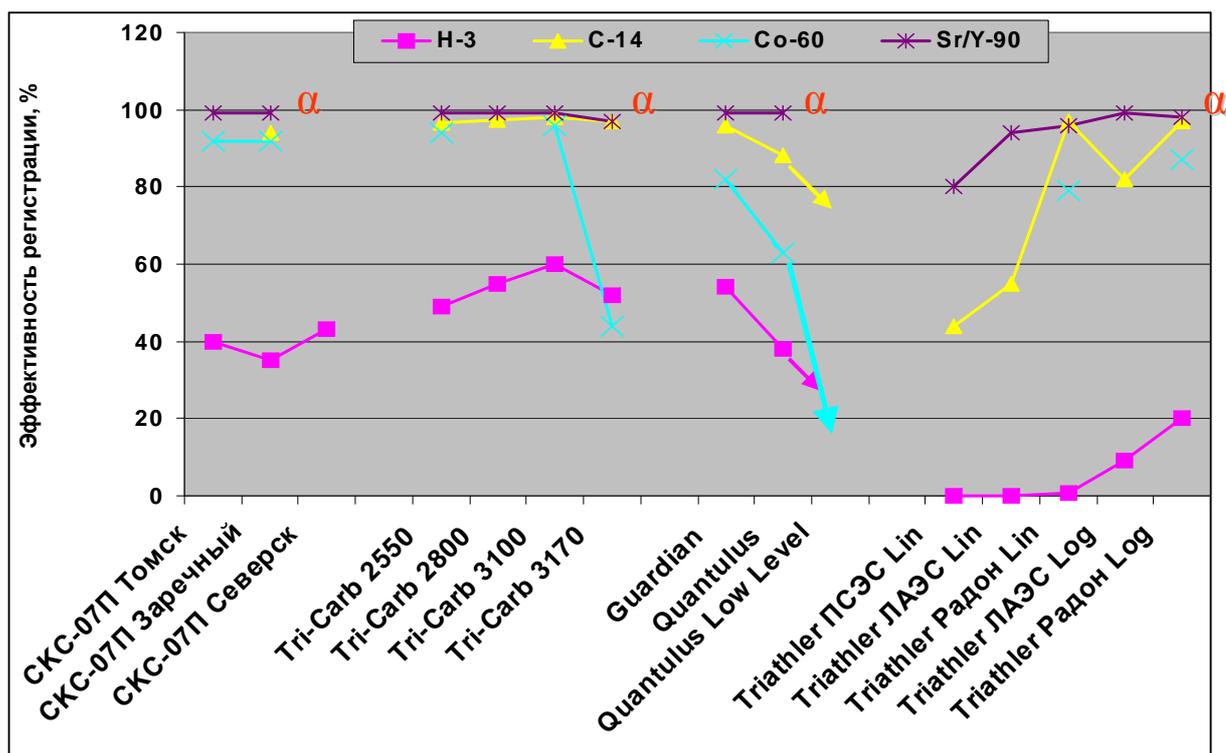


Рис.11. Эффективность регистрации ε (для $tSIE \sim 600$).

Малая эффективность регистрации низкоэнергетических радионуклидов спектрометром Triathler обусловлена необходимостью отрезать начальную часть спектра в связи с особенно высоким и нестабильным фоном в этой области.

Показатель качества (рис.12).

Из рисунка видно, что качество регистрации всеми спектрометрами, кроме низкофоновых и Triathlera, примерно одинаково.

Системы подавления фона позволяют значительно повысить качество, но не для радионуклидов, бета-излучение которых сопровождается гамма-излучением. Для ^{60}Co , измеряемого на TriCarb 3170 качество в низкофоновом режиме несколько хуже, чем в обычном. Для Quantulus в режиме LowLevel данных по таким радионуклидам у нас, к сожалению, нет.

Качество измерений приборами Triathler, как и предполагалось, невысоко.

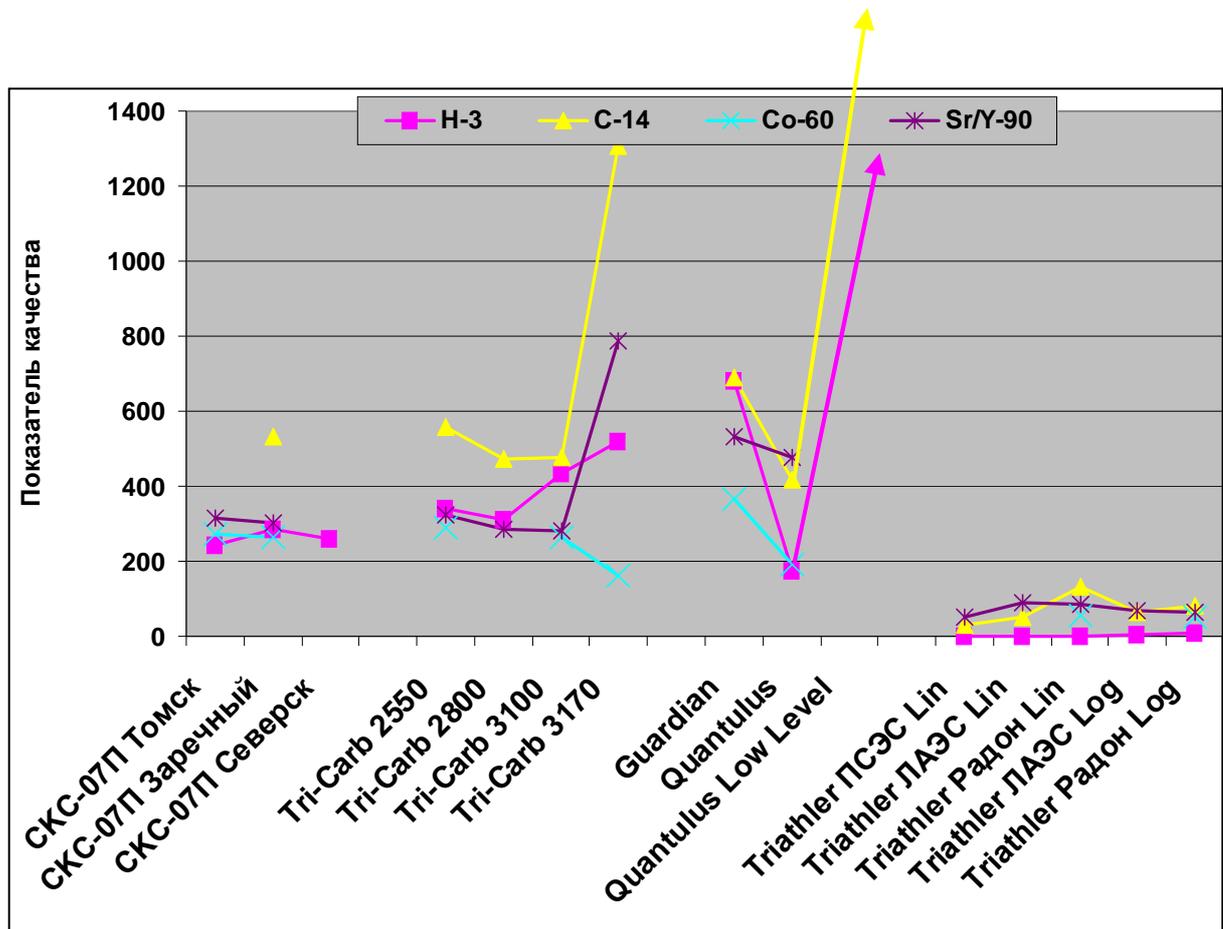


Рис. 12. Показатель качества.

Минимально детектируемая активность (рис.13).

Закономерности для МДА, очевидно, такие же, как и для показателя качества (но, естественно, наоборот).

Дополнительно на этот график мы нанесли данные производителя на младшую, «не спектрометрическую» модель SKC.

Энергетическое разрешение (рис.14).

Энергетическое разрешение всех рассматриваемых спектрометров примерно одинаково, кроме приборов Triathler за счёт более простой электронной части.

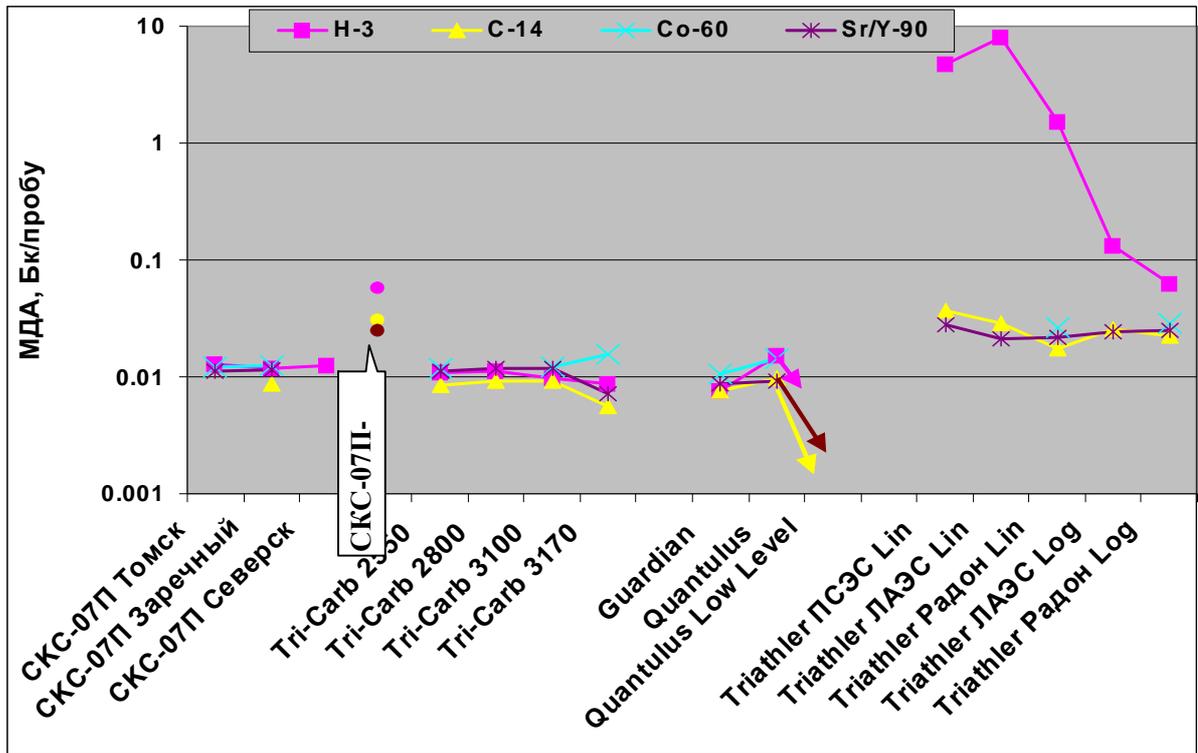


Рис. 13. МДА.

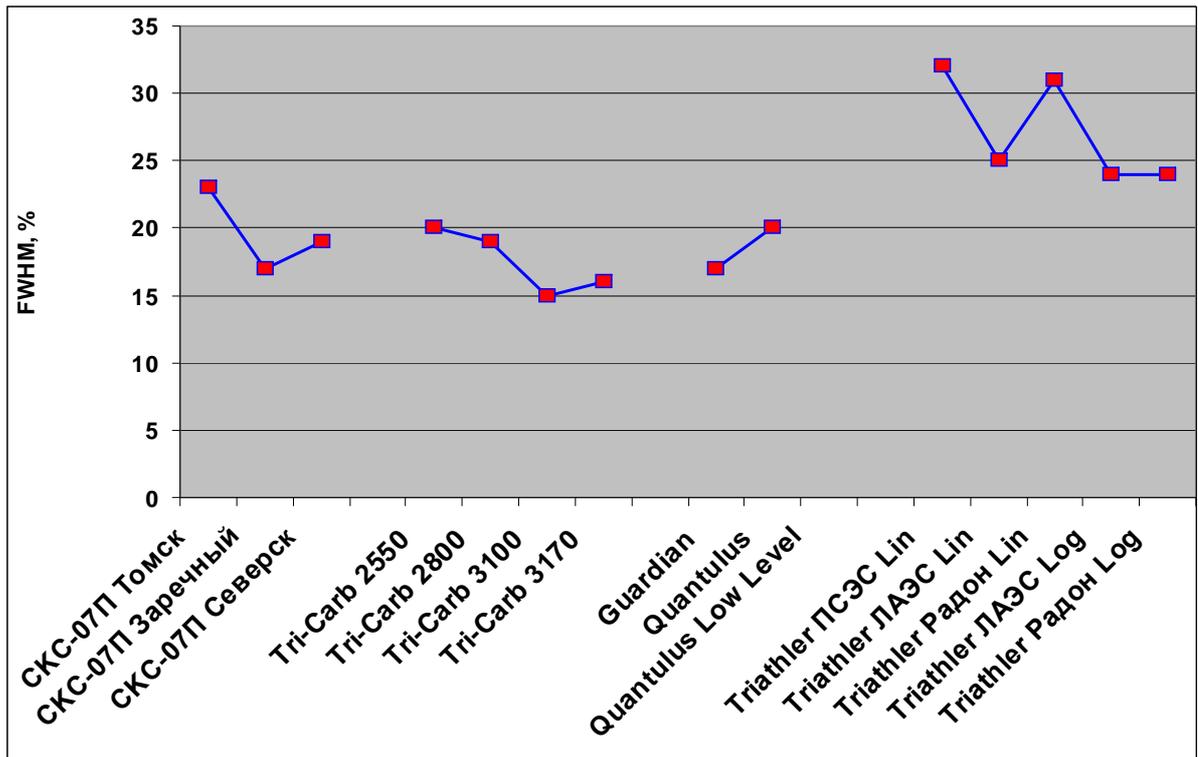


Рис. 14. Энергетическое разрешение.

Численные данные по МДА и остальные критерии сравнения приведены в таблице 1.

Таблица 1.

Критерий	СКС-07П-Б10	СКС-07П-Б11	Tri-Carb 2550-3100	Tri-Carb 3170	Guardian 1414	Quantulus 1220 Stand LowLevel	Triathler
МДА, $^3\text{H}/^{14}\text{C}/$ мБк / $^{90}\text{Sr}/\alpha$	40/20/ /25/~15	12/8/ /12/6	11/9/ /12/6	9/6/ /7/5	8/8/ /9/6	15/10/ 9/1/ /9/7 /1.7/-	60/20/ /22/15
FWHM, %	-	20	18	16	17	20	25
Усиление	Lin	Lin	Lin	Lin	Log	Log	Log + Lin
α/β - разделение	Опция						
Габариты, см Вес, кг	60•20•20 30 - 60		103•81•47 217 - 238		- -	~100•80•160 ~ 800	25•33•19 9
Кол-во загр. флаконов	1		> 400		> 400	> 60	1
Определение тушения	-		+		+	+	-
Цена, тыс.\$	3 - 13		45 - 100	120 - 140	~ 60	130 - 140	10 – 20

Усиление.

Приборы серий СКС и TriCarb имеют линейный тип усиления, приборы завода Wallac – логарифмический. Triathler позволяют переключать режимы в зависимости от решаемой задачи.

Габариты/Вес.

Самым большим и тяжёлым является, очевидно, Quantulus, чем, в частности, и объясняются его уникальные фоновые характеристики.

TriCarb и Guardian по этим параметрам похожи, и занимают промежуточную позицию.

Самыми маленькими являются Triathler и СКС, но если Triathler ввиду малого веса из-за отсутствия серьёзной пассивной защиты можно отнести к носимым, то переноска СКС уже затруднительна.

Определение тушения и количество загружаемых флаконов.

Автоматически определять тушение и загружать на измерения большое количество проб позволяют все «большие» приборы.

Цена.

Цена приборов импортного производства определяется качеством измерений и набором дополнительных опций.

Самыми дорогими, очевидно, являются Quantulus и модель TriCarb 3170, обладающие лучшим показателем качества и полным набором дополнительных опций.

Цена остальных моделей TriCarb определяется, в основном, только набором опций.

Цена приборов фирмы ГринСтар зависит от используемых ФЭУ и пассивной защиты.

Выводы.

Выбор конкретного прибора определяется задачами, которые перед ним будут ставиться и, очевидно, финансовыми возможностями.

При необходимости выполнения большого количества измерений слабоактивных проб с преобладанием низкоэнергетических радионуклидов предпочтение стоит отдать Quantulus. Если преобладают высокоэнергетические радионуклиды – TriCarb 3170.

При более ограниченном бюджете – всем другим моделям TriCarb.

Ещё более ограниченный бюджет или недостаток пространства для размещения прибора – СКС-07П-Б11. Прибор имеет аналогичные регистрационные характеристики при значительно меньших массо-габаритных параметрах. Но нужно учитывать, что при большом количестве измерений работа оператора будет гораздо напряжённей. Хотя при необходимости срочных измерений несколько приборов СКС за цену одного TriCarb позволят проводить анализ нескольких проб одновременно.

Самый бюджетный прибор в обзоре - СКС-07П-Б10 позволит проводить радиометрические измерения. Его преимущество перед другими бета-радиометрами в

более широком энергетическом диапазоне (от нескольких кэВ) и большей чувствительности.

Ниша прибора Triathler – полевые измерения достаточно высоких активностей, что обусловлено его малым весом и габаритами.