

АКАДЕМИЯ НАУК СССР
СИБИРСКОЕ ОТДЕЛЕНИЕ
ИНСТИТУТ ГЕОЛОГИИ И ГЕОФИЗИКИ

БОБРОВ В.А., ГОФМАН А.М.

ЛАБОРАТОРНЫЙ
ГАММА-СПЕКТРОМЕТРИЧЕСКИЙ АНАЛИЗ
ЕСТЕСТВЕННЫХ РАДИОАКТИВНЫХ
ЭЛЕМЕНТОВ

(МЕТОДИЧЕСКИЕ РАЗРАБОТКИ)

НОВОСИБИРСК-1971

АКАДЕМИЯ НАУК СССР
СИБИРСКОЕ ОТДЕЛЕНИЕ
ИНСТИТУТ ГЕОЛОГИИ И ГЕОФИЗИКИ

543.53

БОБРОВ В.А., ГОФМАН А.М.

1946

ЛАБОРАТОРНЫЙ
ГАММА- СПЕКТРОМЕТРИЧЕСКИЙ АНАЛИЗ
ЕСТЕСТВЕННЫХ РАДИОАКТИВНЫХ
ЭЛЕМЕНТОВ

(МЕТОДИЧЕСКИЕ РАЗРАБОТКИ)

НОВОСИБИРСК-1971



РАБОТА ВЫПОЛНЕНА В ЛАБОРАТОРИИ
ГЕОХИМИИ РАДИОАКТИВНЫХ ЭЛЕМЕНТОВ В ЭКЗОГЕННЫХ
ПРОЦЕССАХ ИНСТИТУТА ГЕОЛОГИИ И ГЕОФИЗИКИ СО АН СССР

ОТВЕТСТВЕННЫЙ РЕДАКТОР
Доктор геолого-минералогических наук

КРЕНДЕЛЕВ Ф. П.

О Г Л А В Л Е Н И Е

	Стр.
От редактора	4
§1 . ГАММА-ИЗЛУЧЕНИЕ ЭЛЕМЕНТОВ УРАНОВОГО И ТОРИЕВОГО РЯДОВ	7
§2 . ОПИСАНИЕ РАБОЧИХ УСТАНОВОК	15
а). Однокристалльные спектрометры	17
б). Трехкристалльный спектрометр	24
Основные параметры спектрометра в режиме ДСПП	24
Двухкристалльный спектрометр совпадений	24
Работа спектрометра в режиме ТСАС	27
§3 . МЕТОДИЧЕСКИЕ ВОПРОСЫ АНАЛИЗА НА ОДНОКРИСТАЛЬНОМ СПЕКТРОМЕТРЕ	33
а). Выбор рабочих участков спектра	33
б). Собственный фон установки (детектора)	34
в). Влияние толщины слоя анализируемой навески	36
г). Влияние эманационного эффекта на результаты раздельных определений U(Ra), Th, K	38
§4 . ОСОБЕННОСТИ АНАЛИЗА U(Ra), Th И K НАМНОГОКРИСТАЛЬНОМ СПЕКТРОМЕТРЕ	39
а). Двухкристалльный спектрометр полного погло- щения (ДСПП)	39
б). Двухкристалльный спектрометр совпадений	50
в). Трехкристалльный спектрометр антисовпадений (ТСАС)	51
§5 . ПОРОГИ ЧУВСТВИТЕЛЬНОСТИ И ТОЧНОСТЬ АНАЛИЗА U(Ra), Th, K В ПРОБАХ ГОРНЫХ ПОРОД	54
Заключение	61
Литература	62

От редактора

В последние годы поставлен ряд геологических и геохимических задач, для которых требуется определение содержаний естественных радиоактивных элементов — урана, тория и калия с очень высокой точностью. Ещё на Женевском совещании по мирному использованию атомной энергии в 1955 г была высказана мысль о том, что во многих крупных провинциях золотых и урановых руд породы в целом обладают повышенной радиоактивностью. Дальнейшие исследования показали, что в зависимости от того, какой элемент обуславливает повышенную радиоактивность пород, можно в определенной мере судить о металлогенической специализации рудного района. В частности, золоторудные поля располагаются в пределах зараженных ураном провинций; нефтеносные структуры обладают пониженными содержаниями урана и калия; для пегматитовых полей присущи высокие кларки тория и т.д.

Благодаря различиям в физических и химических свойствах, естественные радиоактивные элементы (ЕРЭ) ведут себя по разному в геологических процессах. Абсолютные содержания этих элементов и особенно их отношения несут большую информацию об условиях миграции и концентрации этих элементов, а также элементов и соединений, находящихся в генетических связях или коррелирующихся с ними. Это относится и к эндо- и к экзогенным процессам. Возможность экспрессного и одновременного анализа всех трех элементов без химической обработки проб привлекает пристальное внимание геологов. Это особенно актуально в связи с тем, что представительность проб в этом случае более надежна, чем при использовании малых навесок при фотометрировании пламени, перлюво-люминесцентном или радиохимическом анализе урана и тория. Важнейшим условием является сопоставимость результатов полевых и лабораторных анализов, выполняемых на единой физической основе, а также возможность многократного повторения анализа одной и той же пробы в разных лабораториях.

В лаборатории геохимии радиоактивных элементов экзогенных процессах Института геологии и геофизики СО АН СССР был поставлен ряд геохимических задач, требующих усовершенствования гамма-спектрометрического метода в связи с необходимостью высоко-

точных определений U, Th, K в пробах пород, в которых содержания этих элементов ниже порога чувствительности существовавших методов. В числе таких задач можно упомянуть такие как : распределение и поведение ЕРЭ в корах выветривания; в основных и ультраосновных породах; в главнейших типах осадочных пород, в том числе в карбонатных; в контактовых ореолах интрузий; в пределах рудных полей различных полезных ископаемых.

У нас в Союзе основополагающими работами в области лабораторного гамма-спектрометрического метода можно считать работы Якубовича А.Л. и его сотрудников, Шумилина И.П., Железновой Е.М., Юфа Б.Я. [17,27] и ряда других авторов. Естественно, что мы были вынуждены в какой-то мере повторить их исследования для того, чтобы лучше представить пути усовершенствования метода.

Не смотря на то, что значительное количество работ содержат сведения о квантовых выходах гамма-излучателей - элементов уранового и ториевого рядов, мы вынуждены были заново собрать сведения о квантовых выходах, подсчитать выход рентгеновского излучения и каскадные излучения. В нашей работе особое значение придается последним двум особенностям излучений элементов уранового и ториевого рядов, поскольку даже такие широко используемые в радиометрии сводки Сисигиной Т.И. [23], Хультивиста Б. [26], Гусева Н.Г. и др. [13] этих сведений не содержат.

Сказанное определяет структуру данной работы. Разумеется, что усовершенствования, внесенные в существующие методы определения содержаний естественных радиоактивных элементов в порошковых пробах, могут быть модернизированы и перенесены на искусственные радиоактивные элементы, а также на пробы в других состояниях (жидкости, твердые тела, биологические объекты).

Данная работа представляет собой краткое изложение методических разделов двух кандидатских диссертаций, выполнявшихся Бобровым В.А. [4] и Гофманом А.М. [II].

Насыщенность работы таблицами позволяет надеяться, что

она окажется полезной в качестве справочного пособия для специалистов, занимающихся лабораторным гамма-спектрометрическим анализом естественных радиоактивных элементов.

Для краткости изложения в работу введены следующие сокращения:

- Кристалл - монокристалл NaJ(Tl) кроме случаев, когда это обговорено особо;
- ДСС - двухкристальный спектрометр совпадений;
- ДСПП - двухкристальный спектрометр полного поглощения;
- ТСАС - трехкристальный спектрометр в режиме антисовпадений;
- ЕРЭ - естественные радиоактивные элементы - уран, торий и калий.

Цифры в квадратных скобках означают номера литературных источников, приведенных в конце работы. В круглых указаны номера уравнений или систем уравнений, упоминающихся в тексте.

Ответственный редактор выпуска,
Доктор геолого-минералогических наук

Ф.П.Кренделев

§ I. ГАММА-ИЗЛУЧЕНИЕ ЭЛЕМЕНТОВ УРАНОВОГО И ТОРИЕВОГО РЯДОВ

В 1963 году вышла работа Джеллепова Б.С., Пекера Л.К., Сергеева В.О. [14], в которой на основе большого экспериментального материала даются в виде схем современные представления о радиоактивных превращениях всех известных изотопов, в том числе и членов уранового и ториевого рядов. Расшифровка этих схем для непосредственного их использования требует подсчета квантовых выходов ядерного (первичного) гамма-излучения и сопутствующего ему рентгеновского (вторичного) излучения.

Известно, что переход из возбужденного в низшее или основное состояние ядра сопровождается передачей энергии либо ядерной частице, либо гамма-кванту, либо атомному электрону.

Поскольку у большинства изотопов* уранового и ториевого рядов при возбуждении в процессе естественного радиоактивного распада энергия верхних уровней меньше энергии связи ядерной частицы, постольку необходимо рассматривать лишь вероятности переходов с передачей энергии гамма-кванту и атомному электрону.

Отношение вероятности второго к первому называется коэффициентом внутренней конверсии. Этот последний резко возрастает с уменьшением энергии возбужденного уровня ядра и достаточно высок для ядер с большим атомным номером, т.е. для членов уранового и ториевого рядов. Количественная сторона этого процесса также зависит от характера ядерного перехода.

Таблицы коэффициентов внутренней конверсии даются в работах Роуза М.Э. [22], Слива А.А. и Банда И.М. [24].

Процесс внутренней конверсии приводит к образованию в атомных оболочках вакансий, заполняемых электронами внешних оболочек атома. Освобождающаяся при этом энергия может быть передана рентгеновскому гамма-кванту, либо внешнему электрону, который покидает атом. Такой электрон называется электроном Оже.

* Исключения составляют ядра Po^{212} и Po^{214} , для которых имеется некоторая вероятность испускания альфа-частиц из возбужденного состояния ядер, т.е. так называемых длиннопробежных альфа-частиц, возникающих в распаде ядер ThC' (Po^{212}) и RaC' (Po^{214}).

Наблюдаемое в этом случае испускание рентгеновских лучей является вторичным эффектом и определяется состоянием атомной оболочки изотопа, а не его ядра. Вероятность рентгеновского излучения характеризуется выходом флюоресценции.

Таким образом, чтобы определить квантовый выход гамма-излучения какого-либо возбужденного уровня ядра, необходимо знать коэффициент внутренней конверсии, а для рентгеновского гамма-излучения - выход флюоресценции (либо выход электронов Оже).

В работе Листенгартена М.А. [20] показано, что выходы флюоресценции для изотопов с атомными номерами от 8I до 9I составляют: для К-оболочки примерно 96% ,
для L-оболочки примерно 40-50% ,
а для M-оболочки не более 5% .

С другой стороны, если энергия возбужденного ядерного уровня выше энергии связи К-электрона, то возникают определенные предпосылки для внутренней конверсии на К-оболочке. Однако распределение внутренней конверсии между К- и L-оболочками атома зависит от характера ядерного перехода. Последнее наглядно иллюстрируется в работе Роуза М.Э. [22]. Так например, в атоме $Z=85$ лишь для конверсий $E1$ и $M1$ в диапазоне энергий переходов от 200 до 800 кэв сохраняется высокое отношение K/L , равное 5,5:1. Для других, более высоких порядков конверсий это отношение уменьшается, и в зависимости от энергии переходов изменяется от десятых долей до пяти единиц.

На основе работ [2,5,6,10,13-15,19-26,30-33,35,36,38-42 , 44-49,51-57] составлена таблица квантовых выходов наиболее сильных гамма-переходов в урановом и ториевых рядах (табл. I)

Особое внимание уделялось подсчету выхода, сопутствующего K_{α} -излучения , т.к. энергия этого излучения и его интенсивность соизмерима с энергией и интенсивностью первичного гамма-излучения некоторых членов уранового ряда, например, UX_1 и RaD .

В табл. I приводятся гамма-линии, квантовый выход которых на распад U^{238} превышает 0,005. Наиболее сильные гамма-линии активно-уранового ряда даются вместе с урановым рядом, их выход - в расчете на распад Th^{238} . Гамма-лучи членов ториевого ряда даются в расчете на распад U^{232} , если их активность превышает 0,01 кванта на распад. При расчетах принято, что 1 мг U^{238}

дает 12,4 распада/сек, а 1 мг Th^{232} дает 4,1 распада/сек. Особенностью гамма-излучений изотопов уранового и ториевого рядов является наличие каскадных переходов. Так, распад RaC (Bi^{214}) сопровождается каскадами, где наиболее сильными являются $1120+609$ кэВ с квантовым выходом 0,19 и $769+609$ кэВ с квантовым выходом 0,06. Аналогично, в ториевом ряду, в распаде ThC'' имеются каскады:

583 + 2614 кэВ с квантовым выходом 0,30

660 + 2614 кэВ с выходом 0,05 и тройные каскады:

511 + 583 + 2614 кэВ с выходом 0,084 ;

277 + 583 + 2614 кэВ с выходом 0,022.

Каскадные излучения осложняют интерпретацию аппаратурных спектров, и в тоже время могут служить предпосылкой для дальнейшего развития методики анализа при определении содержаний U и Th в горных породах, поскольку несут дополнительную информацию.

Изучая гамма-излучение радиоактивных изотопов, физики редко дают оценку сопутствующему рентгеновскому излучению, поскольку оно не является ядерным.

Сопоставленные нами на основе коэффициентов конверсий и первичного гамма-излучения интенсивности рентгеновского излучения подвергнуты экспериментальной проверке. Ни сцинтилляционные, ни пропорциональные счетчики не обладают необходимым спектрометрическим разрешением, чтобы разделить первичное (ядерное) гамма-излучение и рентгеновское излучение в низкоэнергетическом диапазоне, 40–110 кэВ. Для этой задачи нами использован германиево-литиевый детектор фирмы "Saip" объемом $20,5 \text{ см}^3$ [6]. Исследованы эталонные образцы U_3O_8 (сод. урана – 0,943 %), равновесного урана (сод. U, 0 %; 2,5 %), равновесного тория (сод. Th, 0,06 %); жидкие препараты радия и мезотория и порошкообразный препарат радия (содержание в единицах равновесного урана составляет 2%). Насыпная плотность образцов 600 мг/см^2 , а площадь кювет для них – 16 см^2 . Кроме указанных препаратов использовался образец урановой смолки. Учитывая изменяющуюся с энергией фотоэффективность регистрации германиевым детектором, в качестве реперных линий приняты гамма-линии, сопровождающие распад RaB

и UX_1 , а именно 46,5; 62,8 и 91,4 кэв, с квантовыми выходами 0,035; 0,043 и 0,044, соответственно. На рис. 1 приводятся аппаратурные гамма-спектры равновесного урана (сод. 1%), радия в равновесии с продуктами и спектр U_3O_8 (сод. 0,943%). Аппаратурный спектр равновесного тория также в низкоэнергетической области приведен на рис. 2.

Расшифровка спектра велась на основе сопоставления с линиями 62,8 кэв и 91,4 кэв, собственная ширина пиков которых на половине их высоты составила 3,2 кэв. Ширина пиков K_x -излучения превышает ширину ядерных линий почти в 1,5 раза, что свидетельствует о их дуплетности. Сравнение ториевого спектра, не имеющего сильных ядерных гамма-линий в указанном диапазоне, с урановым спектром производилось путем пересчета выходов рентгеновских и гамма-линий на 1 мг U^{238} и Th^{232} .

Сопоставление препаратов с различными содержаниями дает возможность уверенно выделить наведенную более высокоэнергетическим гамма-излучением флюоресценцию U^{238} , которая по нашим оценкам составляет 0,16 кванта/сек на 1 мг U^{238} . Выделение флюоресценции Th^{232} затруднено, так как в ториевом ряду это излучение совпадает с K_x -излучением Th^{228} . Однако, можно ожидать, что флюоресценция Th^{232} того же порядка, что и флюоресценция U^{238} .

Измерение K_x -излучения жидкого препарата радия, в котором удален Rn вместе с его продуктами распада, дает возможность разделить K_x -излучение Rn^{222} и Rn^{219} .

В целом, отмечается вполне удовлетворительная сходимость обзорных и экспериментальных данных. Исключение составляет K_x -излучение Rn^{219} , принадлежащего группе протактиния. Отмеченный Бейменом Б. и Россом М. [31] аномально высокий выход K_x -излучения Rn^{219} подтверждается лишь наполовину. В таблице I выход $K\alpha_1$ -линии, $K\alpha_2$ -линии для Rn^{219} приведены по нашим данным [6], для всех остальных гамма-линий сохранены данные, полученные на основе обзора.

Таблица 2 иллюстрирует гамма-излучение уранового и ториевого рядов в диапазоне от 40 до 110 кэв на основе обзорных [10, 14, 15, 19, 30, 31, 33, 35, 39-42, 44, 46, 48-54] и новых экспериментальных данных [6].

КВАНТОВЫЕ ВЫХОДЫ ГАММА-ПЕРЕХОДОВ В УРАНОВОМ И
ТОРИЕВОМ РЯДАХ

Таблица I

I	II	III	I	II	III	I	II	III
<u>Ряд урана</u>								
$\text{Th}^{234} \xrightarrow{(\text{UX}_1)} \text{Pa}^{234}$	29	0,07	$\text{Ra}^{223} \xrightarrow{(\text{AcX})} \text{Rn}^{219}$	81,1 (K_{α_1})	0,03	$\text{Bi}^{214} \xrightarrow{(\text{RaC})} \text{Po}^{214}$	77 (K_{α_1})	0,06
	62,8	0,53		83,8 (K_{α_1})	0,06		79 (K_{α_1})	0,12
$\text{Pa}^{234} \xrightarrow{(\text{UX}_2)} \text{U}^{234}$	760	0,10		150	0,07		609	6,65
	1000	0,10		268	0,07		666	0,32
$\text{U}^{235} \xrightarrow{\text{Th}} \text{Th}^{231}$	145	0,06	$\text{Bi}^{211} \xrightarrow{(\text{AcC})} \text{Tl}^{207}$	350	0,09		769	0,75
	185	0,33					935	0,46
$\text{Th}^{231} \xrightarrow{(\text{U})} \text{Pa}^{231}$	25,6	0,18	$\text{Ra}^{226} \xrightarrow{\text{Rn}} \text{Rn}^{222}$	83,8 (K_{α_1})	0,05		1120	2,36
	84,2	0,07			186	0,51		1238
$\text{Th}^{230} \xrightarrow{(\text{Jo})} \text{Ra}^{226}$	67,8	0,07	$\text{Pb}^{214} \xrightarrow{(\text{RaB})} \text{Bi}^{214}$	53	0,12	$\text{Po}^{214} \xrightarrow{(\text{RaD})} \text{Bi}^{210}$	1281	0,24
				74,8 (K_{α_1})	0,50		1378	0,67
				77,1 (K_{α_1})	1,04		1403	0,58
				87,3 (K_{β_1})	0,31		1509	0,33
				86,8 (K_{β_2})	0,14		1583	0,15
				242	1,48		1668	0,16
				295	2,65		1728	0,44
				352	5,31		1764	2,36
							2117	0,19
							2204	0,75
		2446	0,24					
			46,5	0,43				
<u>Ряд тория</u>								
$\text{Ac}^{228} \xrightarrow{(\text{MsTh}_2)} \text{Th}^{228}$	89,9 (K_{α_1})	0,08	$\text{Th}^{228} \xrightarrow{(\text{RaTh})} \text{Ra}^{224}$	89	0,06	$\text{Bi}^{212} \xrightarrow{(\text{ThC})} \text{Po}^{212}$	727	0,29
	93,3 (K_{α_2})	0,16					786	0,04
	105,6 (K_{β_1})	0,05			1620	0,07		
	98	0,09	$\text{Ra}^{224} \xrightarrow{\text{Rn}} \text{Rn}^{220}$	241	0,14	$\text{Bi}^{212} \xrightarrow{\text{Tl}} \text{Tl}^{208}$	40	0,06
	184	0,05					$\text{Bi}^{208} \xrightarrow{(\text{ThC})} \text{Pb}^{208}$	72,8 (K_{α_1})
	209	0,12				75 (K_{α_1})		0,04
	270	0,11				84,3 (K_{β_1})		0,01
	328	0,13		$\text{Pb}^{212} \xrightarrow{(\text{ThB})} \text{Bi}^{212}$	74,8 (K_{α_1})	0,32		277
	338	0,35				77,1 (K_{α_1})	0,66	511
	410	0,14			87,3 (K_{α_1})	0,20	583	1,22
	458	0,10			86,8 (K_{β_1})	0,08	763	0,04
	790	0,20			238	1,86	860	0,20
	831	0,04			300	0,15	2614	1,45
	908	1,02						
	960	0,82						
	1600	0,53						

- I - материнский (в скобках его обозначение) и дочерний изотопы;
 II - энергия гамма-линии и рентгеновского излучения (в скобках обозначение серии), в кэв;
 III - выход излучения в распадах/сек на I мг U^{238} (ряд урана и I мг Th^{232} (ряд тория))

ГАММА-ИЗЛУЧЕНИЕ УРАНОВОГО И ТОРИЕВОГО
 РЯДОВ В ДИАПАЗОНЕ ОТ 40 ДО 110 кэВ

Таблица 2

Материнское ядро	Рентгеновская линия дочернего ядра	Энергия кэВ	Выход в квантах на распад ^{238}U , ^{232}Th	
			Γ^{X}	Π^{X}
У р а н о в ы й р я д				
RaD		46,5	0,035	принято 0,035
UI		48	0,002	0,003
RaAc		50	0,002	} 0,018
RaB, UII		53	0,012	
UY		58	} 0,002	0,005
		63,8		
UX ₁		62,8	0,043	принято 0,043
Io		67,8	0,0059	принято 0,0059
	$K_{\alpha_1} + K_{\alpha_2}(\text{Bi } 214)$	77,1 и 74,8	0,124	} 0,140
	$K_{\alpha_1} + K_{\alpha_2}(\text{Po } 214)$	79,3 и 76,9	0,015	
	$K_{\alpha_1} + K_{\alpha_2}(\text{Rn } 219)$	83,8 и 81,1	0,0143	
	$K_{\alpha_1} + K_{\alpha_2}(\text{Rn } 222)$	83,8 и 81,1	0,006	
UY		84,2	0,005	0,004
	$K_{\alpha_1} + K_{\alpha_2}(\text{Bi } 214)$	87,3 и 86,8	0,036	0,035
	$K_{\alpha_1} + K_{\alpha_2}(\text{Po } 214)$	89,8 и 89,4	0,004	0,005
UX ₁		91,4	0,044	принято 0,044
	$K_{\alpha_1} + K_{\alpha_2}(\text{Rn } 219)$	94,6 и 94,2	0,004	} 0,004
	$K_{\alpha_1} + K_{\alpha_2}(\text{Rn } 222)$	94,6 и 94,2	0,002	
Т о р и е в ы й р я д				
MsTh ₂		58	0,005	} 0,020
Th ²³²		60	0,002	
	$K_{\alpha_1} + K_{\alpha_2}(\text{Pb } 208)$	75 и 72,8	0,0152	} 0,280
	$K_{\alpha_1} + K_{\alpha_2}(\text{Bi } 212)$	77,1 и 74,8	0,240	
	$K_{\alpha_1} + K_{\alpha_2}(\text{Rn } 220)$	83,8 и 81,1	0,004	} 0,083
	$K_{\alpha_1} + K_{\alpha_2}(\text{Pb } 208)$	84,9 и 84,3	0,004	
	$K_{\alpha_1} + K_{\alpha_2}(\text{Bi } 212)$	87,3 и 86,8	0,070	
RaTh		89	0,016	0,015
	$K_{\alpha_1} + K_{\alpha_2}(\text{Th } 228)$	93,3 и 89,9	0,058	0,060
MsTh ₂		98	0,023	0,016
	$K_{\alpha_1} + K_{\alpha_2}(\text{Th } 228)$	105,6 и 104,8	0,017	0,017

I - На основе работ [10, 14, 15, 19, 30, 31, 33, 35, 39-42, 44, 46, 48, 49, 52-54]

II - Результаты интерпретации гамма-спектров на G(Li) детекторе

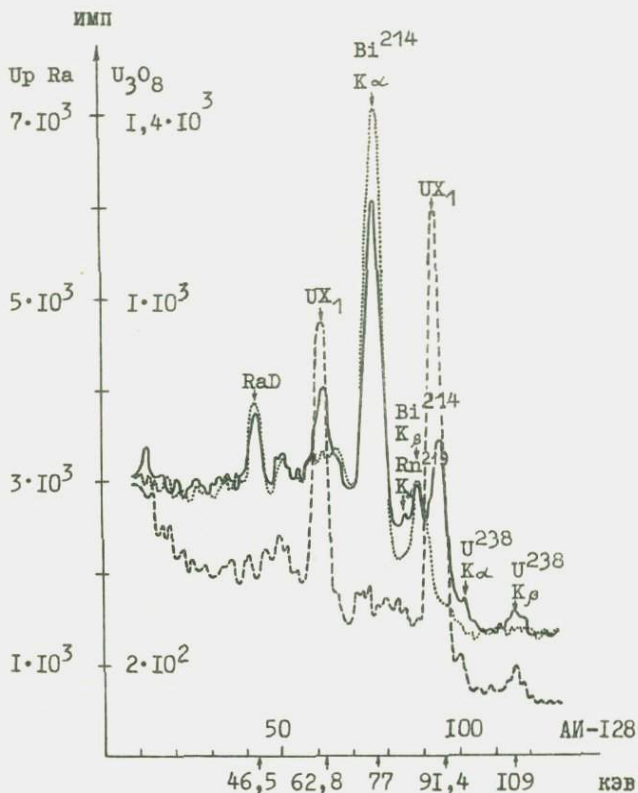


Рис. I - Аппаратурные спектры равновесного урана (сплошная линия), радия в равновесии с продуктами распада (точки) и урана без группы радия, U_3O_8 (пунктир); германиево-литиевый детектор объемом $20,6 \text{ см}^3$.

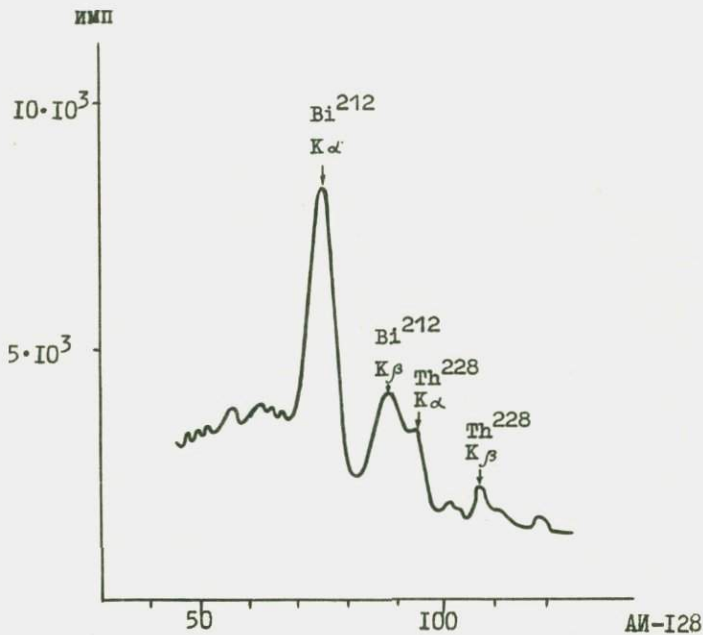


Рис.2 - Аппаратурный спектр равновесного тория.
 Детектор германиево-литиевый, объемом 20,6 см³.

§ 2. ОПИСАНИЕ РАБОЧИХ УСТАНОВОК

В лаборатории собраны четыре спектрометрические установки. Основной каждой из них служат монокристалл - детектор из NaJ(Tl) , сопряженный с фотоэлектронным умножителем. Используются кристаллы следующих размеров (диаметр-высота):

- 1) 80x80 мм с колодцем 23x 60 мм;
- 2) 50x80 мм;
- 3) 150x100 мм;
- 4) Комбинация двух кристаллов размером 150x120 и одного 50x120 с колодцем 20x100 мм.

Все кристаллы упакованы натриевым стеклом типа С-49-1 (содержание калия в таком стекле не превышает 0,04 %). Фотоэлектронные умножители типа ФЭУ-52, -56, -49 выбраны не только из-за их хороших спектрометрических параметров (разрешение по Cs^{137} - 7±9%), но и из-за их низкого собственного радиоактивного фона (колба из стекла С-49-1).

Первые три из названных монокристаллов используются в однокристалльных спектрометрах, назначение каждого из которых определяется размером анализируемого образца (навески) и его суммарной радиоактивностью. Комбинация трех кристаллов в одной установке позволяет осуществить практически любой тип сцинтилляционного спектрометра, а именно: а) двухкристалльный спектрометр полного поглощения; б) спектрометр совпадений; в) спектрометр с защитой на антисовпадениях (рис. 3).

В трехкристалльной установке два больших кристалла имеют полуцилиндрические выемки на торце вдоль диаметра. Когда кристаллы расположены вплотную друг к другу, выемки образуют цилиндрическое отверстие, в котором и размещается третий (центральный) кристалл 50x120 мм с колодцем. Большие кристаллы (каждый) находятся в оптическом контакте с фотоэлектронными умножителями ФЭУ-49, центральный кристалл сочленен с фотоэлектронным умножителем ФЭУ-13.

При простом суммировании импульсов от боковых кристаллов и расположении пробы внутри колодца вместо центрального кристалла (рис. 3а) спектрометр работает как двухкристалльный спектрометр полного поглощения (ДСПП). Этот режим аналогичен режиму работы

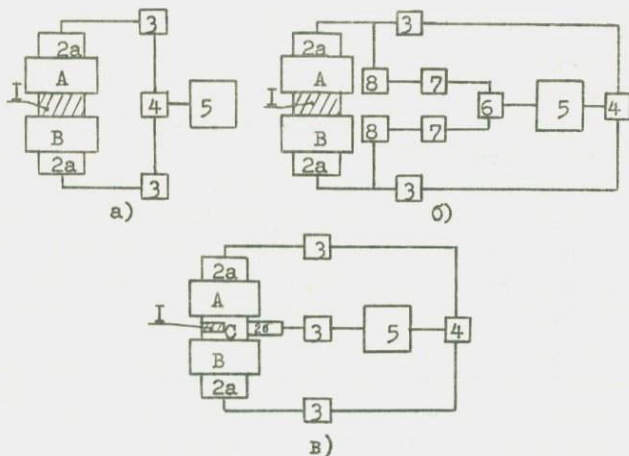


Рис.3 - Блок-схемы регистрации импульсов в различных режимах работы комбинированного гамма-спектрометрического датчика.

а) режим двухкристального спектрометра полного поглощения (ДСПП); б) режим спектрометра совпадений (ДСС); в) режим спектрометра с защитой анти-совпадениями (ТСАС). Размеры кристаллов А и В 150х120 мм; С - 50х120 мм;

І - анализируемая проба; 2а-ФЭУ-49; 2б - ФЭУ-13;
 3 - предусилители; 4 - суммирующий усилитель ;
 5 - амплитудный анализатор; 6 - схема совпадений;
 7 - дискриминаторы; 8 - линейные усилители.

большого кристалла с колодцем.

Режим работы двухкристального спектрометра совпадений осуществляется по схеме 3б. В этом режиме анализируются только амплитуды импульсов, зарегистрированные одновременно двумя большими кристаллами. Если центральный кристалл расположить в середине полости между боковыми кристаллами, а измеряемую пробу внутри колодца центрального кристалла (схема 3в) и регистрировать антисовпадения импульсов центрального и боковых кристаллов, то получим режим работы спектрометра с защитой антисовпадениями (ТСАС).

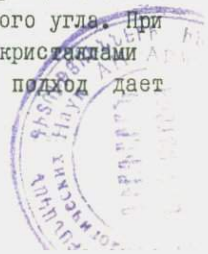
При работе в режиме ДСПП пробы помещаются в контейнеры с объемом 300 см^3 (50x150 мм). В режиме ТСАС объем контейнеров (пробирок) 30 см^3 (20x100 мм).

Фоновая защита детекторов от окружающей среды осуществляется свинцовыми домиками ДС-000 и блоками из свинца С-00.

В качестве регистрации и согласующей аппаратуры используются промышленные типы усилителей УИС-2, одноканальных дифференциальных анализаторов ААДО-1, ПД-2 и многоканальные анализаторы АИ-100, АРС-100 (фирма „Saip“), блоки установки „Пучок“.

а). Однокристалльные спектрометры

Аппаратурные спектры равновесного урана, равновесного тория, мезотория, калия, снятые на однокристалльных спектрометрах и геометрия измерений иллюстрируется графиками (фиг.4) Построены графики фотоэффективности регистрации данными спектрометрами (кристаллами NaJ(Tl)) с учетом принятой геометрии измерения и величины навесок (табл.3). Для этого на графиках (рис.4) 5,6) выделим пики полного поглощения основных линий $91,4 (\text{U}_{\text{X}_1})$; $238 (\text{ThB})$; $352 (\text{RaB})$; $583 (\text{ThC}'')$; $609 \text{ кэВ} (\text{RaC})$; 908 и $960 \text{ кэВ} (\text{MsTh}_2)$; $1764 \text{ кэВ} (\text{RaC})$. Выход этих линий из источников взят в расчете на полное количество равновесного урана, равновесного тория и калия, содержащихся в измеряемых эталонных образцах, без учета их ослабления в материале образца и конструктивных элементах детектора и без учета телесного угла. При построении кривых фотоэффективности регистрации кристаллами учтены гамма-линии, находящиеся в каскадах. Такой подход дает



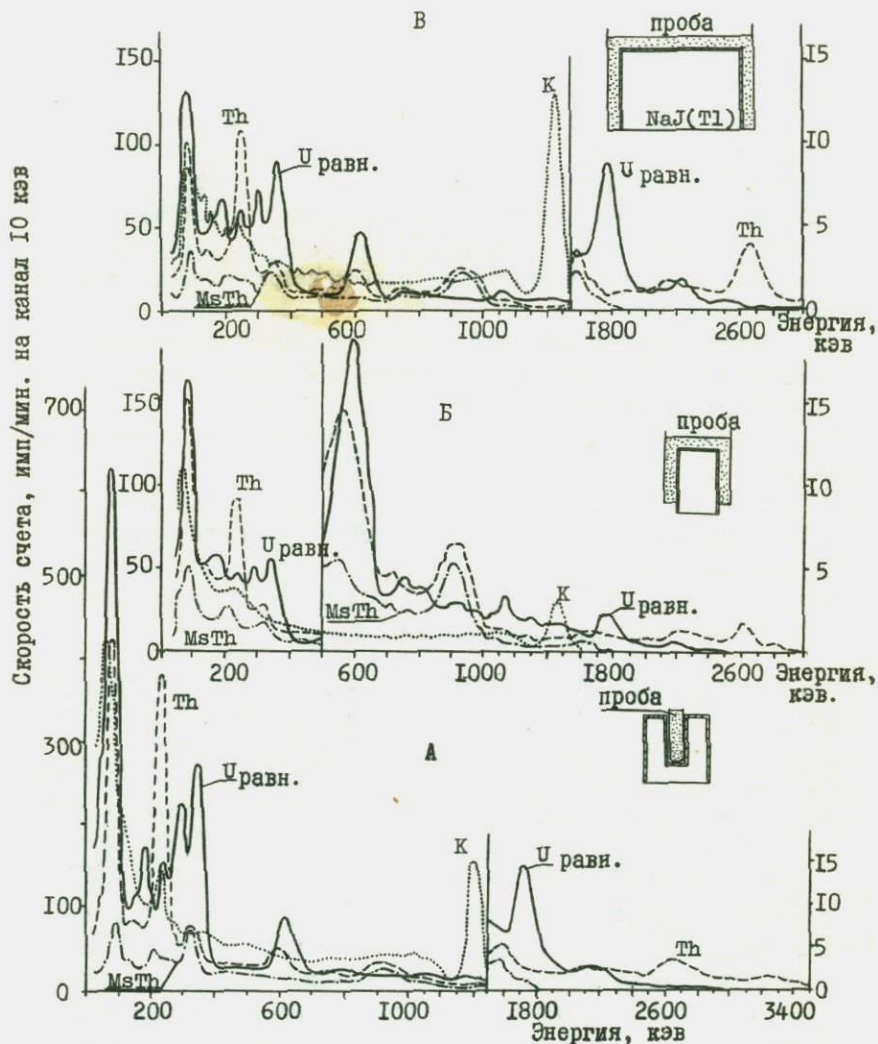


Рис.4 - Аппаратурные спектры равновесного урана, тория и калия с разными кристаллами и различными геометриями.

Размеры кристаллов: А - 80x80 сколодцем 23x60; Б - 50x80; В - 150x100 мм. U равн. - 10 мг, Th равн. - 20мг, MsTh₂ - 20 мг экв., К - 100 г.

нам возможность показать фактическую эффективность регистрации кристаллами 50×80 мм с колодцем, 150×100 мм и 50×80 мм при принятых условиях измерения (рис. 5).

Порошковые пробы (препараты), облегчающие кристаллы, представляют набор точечных источников, для которых в целом реализуется телесный угол от 20% (кристалл 50×80 мм) до 30% (кристалл 150×100 мм) от 4π . Для кристалла 80×80 мм с колодцем телесный угол, близкий к 90% от 4π .

Фотоэффективность регистрации кристаллом 150×100 мм высокоэнергетических линий (1,46; 1,76 и 2,62 мэв) близка к фотоэффективности регистрации кристаллом 80×80 мм с колодцем для тех же линий, несмотря на различные телесные углы. В низкоэнергетической области различие фотоэффективности регистрации этими кристаллами за счёт телесного угла больше. Отличие фотоэффективностей регистрации кристаллами 50×80 мм и 80×80 мм с колодцем сохраняется на всех энергиях. Кажущаяся фотоэффективность регистрации линий 583 кэв (ThC'') и 609 кэв (RaC) падает с увеличением телесного угла (влияние суммирования каскадов). Это сказывается и на падении относительной высоты пиков полного поглощения этих линий (табл. 4), особенно для колодезного кристалла (большой телесный угол).

Для кристалла 150×100 мм преобладающим эффектом в формировании фотопиков для линий средних и высоких энергий является многократное рассеяние, и падение высоты пиков линий 583 и 609 кэв не так контрастно, как в случае кристалла с колодцем.

Приведенные данные позволяют объективно выбрать рабочие участки при определении $U(\text{Ra})$, Th , K в зависимости от величины кристалла. Если для малых и средних по размерам кристаллов использование высоко- и среднеэнергетических участков спектра не дает существенного выигрыша в общей чувствительности на $U(\text{Ra})$, Th , K , то для большого кристалла чувствительность к основным линиям, начиная с энергии 900 кэв, растет в 2-2,5 раза быстрее, чем чувствительность к низкоэнергетическим линиям, где она обусловлена лишь увеличением веса анализируемой навески.

Б. Кристалл - 50x80 мм; проба облегает кристалл, площадь облегания 145 см², навеска 400г

	88- 102	165- 205	210- 270	282- 372	550- 665	875- 1000	1085- 1240	1380- 1550	1600- 1900	2360- 2780
Удельная скорость счета ¹⁾	153	208	240	405	144	27,3	64,5	26	37	1,2
Фон датчика, имп/мин	10	9,5	18	19	9,8	3,7	5,0	3,4	2,2	2,0
Чувствительность, ²⁾ г/т	0,22	0,19	0,23	0,14	0,288	0,90	0,45	0,92	0,52	15,2
<u>Урановые эквиваленты</u>										
Торий равновесный ³⁾	0,52	0,40	0,85	0,23	0,37	1,06	0,19	0,20	0,31	12,0
Мезоторий ³⁾	0,16	0,12	0,26	0,15	0,14	0,88	0,09	0,11	-	-
Торий (В+С) ³⁾	0,36	0,28	0,59	0,08	0,23	0,16	0,10	0,09	0,31	12,0
Калий, в 10 ⁻⁴	0,62	0,65	0,83	0,41	0,61	3,10	3,30	11,4	-	-
Уран (без Ва)	0,26	0,16	0,050	0,013	0,012	0,057	0,006	0,003	-	-

В. Кристалл-150x100 мм; проба облегает кристалл, площадь облегания 650 см², навеска 700г

	85- 100	210- 270	283- 385	540- 660	860- 980	1380- 1560	1560- 1660	1670- 1840	2530- 2860
Удельная скорость счета ¹⁾	120	330	762	382	84	110	30	130	3,5
Фон датчика, имп/мин	30	100	124	85	55	55	13	22	13
Чувствительность ²⁾ , г/т	0,34	0,23	0,11	0,18	0,66	0,51	0,90	0,26	2,6
<u>Урановые эквиваленты</u>									
Торий равновесный	0,39	0,72	0,18	0,33	1,52	0,19	0,48	0,10	11,8
Мезоторий ³⁾	0,19	0,18	0,13	0,12	1,36	0,09	0,32	-	-
Торий (В+С) ³⁾	0,20	0,54	0,05	0,21	0,16	0,10	0,16	0,10	11,8
Калий, в 10 ⁻⁴	0,98	0,75	0,45	0,50	2,8	14,0	0,5	-	-
Уран (без Ва), г/т	0,44	0,09	0,02	-	-	-	-	-	-

1) Удельная скорость счета - имп/мин для равновесного урана в расчете на 1г.%(10мг);

2) Чувствительность - порог чувствительности для равновесного урана;

3) В единицах равновесного тория.

ПОРОГИ ЧУВСТВИТЕЛЬНОСТИ ДЛЯ РАВНОВЕСНОГО УРАНА И УРАНОВЫЕ ЭКВИВАЛЕНТЫ
ПО ЭНЕРГЕТИЧЕСКИМ УЧАСТКАМ

Время измерений для всех кристаллов 60 мин; анализатор АИ - 100 - I

А. Кристалл 80x80 мм с колодцем 23x60 мм; проба в колодце; навеска 20 г

Таблица 3

Основные показатели	Энергетические участки спектра, кэВ										
	90-105	165-205	210-270	280-375	540-660	870-990	990-1200	1380-1565	1565-1650	1600-1900	2340-2790
Удельная скорость счета ¹⁾	605	602	792	1905	609	172	302	193	100	271	12,6
Фон датчика, имп/мин	16	25,3	31,4	36,5	29,8	15,3	21,0	15,3	4,6	10,1	8,9
Чувствительность, ²⁾ г/т	1,72	2,15	1,84	0,82	2,33	5,85	3,85	5,25	5,55	3,05	62,0
<u>Урановые эквиваленты</u>											
Торий равновесный	0,36	0,30	1,05	0,17	0,276	1,02	0,37	0,202	0,365	0,162	4,25
Мезоторий ³⁾	0,11	0,11	0,16	0,115	0,092	0,74	0,19	0,097	0,190	0,026	0,00
Торий (В+С) ³⁾	0,25	0,19	0,89	0,055	0,184	0,28	0,18	0,105	0,175	0,136	4,25
Калий, в 10 ⁻⁴	0,73	0,675	0,75	0,345	0,71	2,75	2,33	8,90	0,79	-	-
Уран (без Ra)	0,305	0,160	0,034	0,010	0,010	0,03	-	-	-	-	-

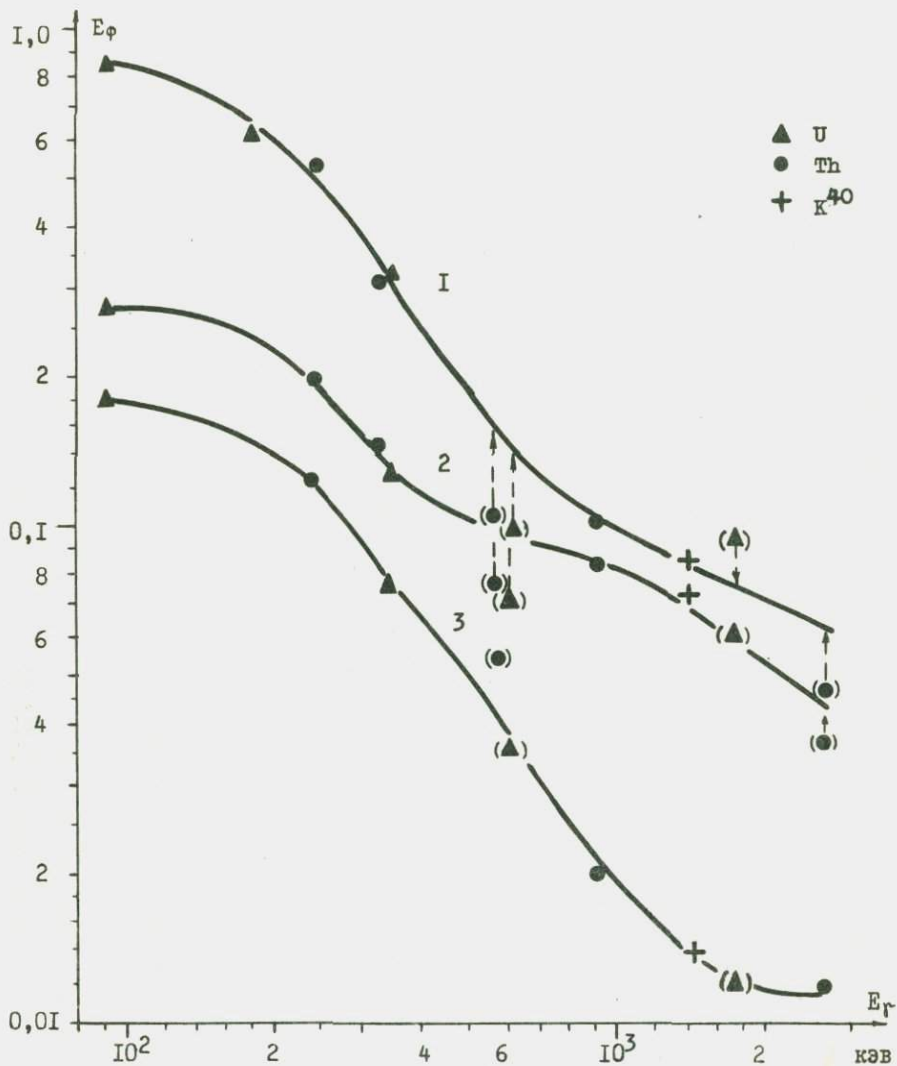


Рис. 5 - Фотоэффективность регистрации E_{ϕ} на однокристалльных спектрометрах с различными размерами кристаллов. В скобках - измерения каскадных гамма-линий.
 I - 80x80 мм с колодцем 23x60 мм. 2 - 150x100 мм. 3 - 50x80 мм.

ОТНОШЕНИЕ ПИКА ПОЛНОГО ПОГЛОЩЕНИЯ К НЕПРЕРЫВ-
НОМУ РАСПРЕДЕЛЕНИЮ В УЧАСТКЕ ПЕРВИЧНОЙ ГАММА-
ЛИНИИ

Таблица 4

Энергия кэВ	Кристал (размеры, мм)		
	80x80 с колодцем	150x100	50x80
91,4	0,31	0,44	0,28
238	4,9	1,6	1,5
352	4,2	3,6	1,9
583*	0,78	1,4	1,2
609*	1,55	3,1	1,9
908	1,4	2,2	1,6
960			
1764**	2,1	3,5	1,2

* в каскаде

** сумма каскадов (частично)

б). Трехкристальный спектрометр

Выше уже говорилось (рис.3), что трехкристальный спектрометр может включаться по разным схемам и работать в режимах совпадения, полного поглощения и антисовпадений. Ниже рассмотрены основные параметры разных схем.

Основные параметры спектрометра в режиме ДСПП

Название спектрометра определяется размерами составляющих кристаллов и практически 4 π - геометрией измерений (схема рис.3а). Сигналы с фотоумножителей ФЭУ-49 через предусилители и суммирующий усилитель поступают на вход 100-канального амплитудного анализатора.

Энергетическая калибровка и проверка линейности спектрометра производилась как с помощью источников моноэнергетического гамма-излучения (Hg²⁰³, Mn⁵⁴, Cs¹³⁷; Zn⁶⁵, Am²⁴¹, K⁴⁰), так и по наиболее интенсивным и хорошо разрешенным линиям в спектрах урана (радия) и тория. Результаты проверки линейности спектрометра приведены на графике (рис. 6а). Энергетическое разрешение δ (рис.6б) представлено как функция от аргумента $1/\sqrt{E}$. Разрешение спектрометра по линии Cs¹³⁷ составляет 12,7%.

Зависимости эффективности регистрации спектрометром $E_{\text{ф}}$, фотоклада $P_{\text{ф}}$ и фотоэффективности регистрации спектрометром $E_{\text{ф}}$ от энергии гамма-излучения приводятся на графиках (рис.7). В области малых энергий заметно сильное поглощение гамма-квантов в упаковке монокристалла ($\sim 1,5$ см Al+MgO). По этой же причине эффективность регистрации гамма-квантов с энергией 238 кэв (ThB) уменьшается примерно на 20% с энергией 352 кэв (RaB) - примерно на 10%.

Аналогично таблице 3 для однокристалльных спектрометров, в таблице 5 показаны пороги чувствительности для равновесного урана и урановые эквиваленты по основным энергетическим участкам спектрометра в режиме ДСПП.

Двухкристальный спектрометр совпадений.

Режим ДСС используется для анализа каскадных гамма-излу-

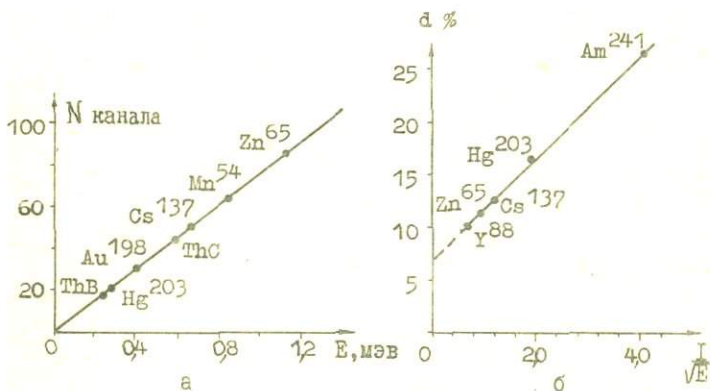


Рис.6 - Энергетическая шкала (а) и энергетическое разрешение (б) гамма-спектрометра ДСПП.

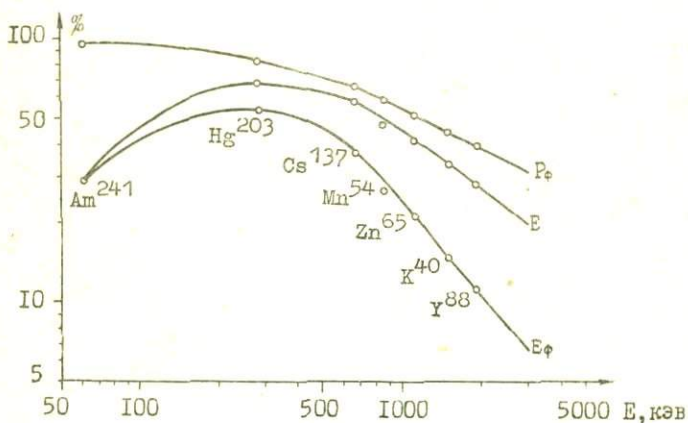


Рис.7 - Фоточасть (P_ϕ), эффективность (E) и фотоэффективность (E_ϕ) регистрации спектрометром ДСПП.

ПОРОГИ ЧУВСТВИТЕЛЬНОСТИ ДЛЯ РАВНОВЕСНОГО УРАНА И УРАНОВЫЕ
ЭКВИВАЛЕНТЫ ПО ЭНЕРГЕТИЧЕСКИМ УЧАСТКАМ ДЛЯ ДСПП

Все пробы - 500 г; время измерения - 60 мин

Таблица 5

Основные показатели	Энергетические участки, кэВ						
	220- 260	320- 380	560- 660	840- 1020	1360- 1560	1650- 1830	2500- 3400
Удельная скорость счета ¹⁾	715	986	480	309	237	230	18,6
Фон спектрометра, имп/мин	208	188	159	150	90	35	41
Чувствительность ²⁾ , г/т	0,21	0,14	0,27	0,41	0,41	0,27	3,56
<u>Урановые эквиваленты</u>							
Торий равновесный, ед.	0,82	0,23	0,39	0,97	0,21	0,12	6,20
Калий, в 10^{-4}	1,01	0,54	0,83	2,25	10,13	-	-

1) и 2) - как в таблице 3

чений. В распаде RaC каскадное излучение $II20 + 609$ кэв имеет квантовый выход $0,19$. В ториевом ряду распад ThC'' сопровождается каскадными переходами $583 + 2614$ кэв и $511 + 583 + 2614$ кэв с квантовыми выходами $0,30$ и $0,084$ соответственно.

Как видно из блок-схемы (фиг.3б), отрицательные импульсы с анодов фотоэлектронных умножителей через широкополосные усилители и амплитудные дискриминаторы подаются на схему совпадений. С выхода последней импульсы поступают на вход управления 100-канального амплитудного анализатора, на другой вход которого с датчика-анализатора подаются импульсы для амплитудного анализатора. Из этих импульсов многоканальный анализатор отбирает и регистрирует только те, которые совпадают во времени с управляющими импульсами.

На рис. 8 приведены аппаратурные спектры радия и тория, полученные при настройке амплитудного дискриминатора в цепи управляющего датчика на область энергий $460-660$ кэв (дифференциальный режим), а дискриминатора в цепи анализирующего датчика на нулевой порог (интегральный режим). В спектрах отчетливо наблюдаются пики с энергиями $0,769$; $0,935$; $1,12$ мэв (RaC) и $2,614$ мэв (ThC''), соответствующие гамма-квантам, присутствующим в каскадах с гамма-квантами $0,609$ мэв (RaC) и $0,583$ мэв (ThC''). Пики с энергиями $0,609$ мэв (RaC) и $0,583$ мэв (ThC'') обязаны своим происхождением одновременному полному поглощению гамма-квантов указанных энергий в кристалле-анализаторе и неполному поглощению находящихся с ними в распаде гамма-квантов в управляющем кристалле.

В качестве аналитических участков выбраны (табл.6) интервалы $1,02-1,25$ мэв и $2,10-2,90$ мэв.

Работа спектрометра в режиме ТСАС

Наличие в амплитудном спектре, измеренном на сцинтилляционном спектрометре с кристаллом йодистого натрия, непрерывного распределения, обусловленного эффектом Комптона и рождением пар, вызвано тем, что рассеянный квант или аннигиляционное излучение покидает анализирующий кристалл, унося с собой часть энергии первичного кванта. Если регистрировать выходящее из

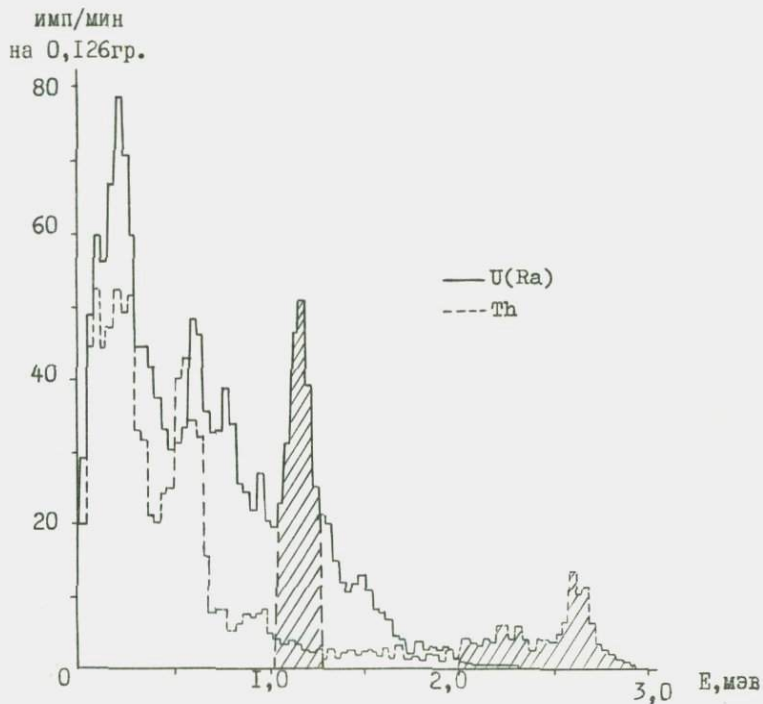


Рис. 8 - Аппаратурные спектры радия и тория, полученные на спектрометре гамма-гамма совпадений при управлении импульсами, соответствующими гамма-квантам с энергией 460-660 кэВ.

УДЕЛЬНАЯ ЗАГРУЗКА РАБОЧИХ КАНАЛОВ В
РЕЖИМЕ ДСС

Время измерений - 60 мин, навеска - 500 г

Таблица 6

Основные показатели	Области совпадений, кэВ	
	460-660 1020-1250	440-680 2100-2900
Удельная скорость счета ¹⁾ ; урана (радия) тория	24 I	- 6
Фон датчика, имп/мин	0, I	0, I5
<u>Эффективность регистрации</u> <u>В(%)</u>		
$E_{U(Ra)}$	0,3	-
E_{Th}	-	0,24
Отношение $Th : U(Ra)$	0,04	100
Чувствительность ²⁾		
$U(Ra)$	0, I7	
Th		0,85

- 1) Удельная скорость счета в имп/мин в расчете на I гр.% (10 мг) равновесного урана и тория;
- 2) Чувствительность - порог чувствительности определения для равновесных урана и тория, г/т.

кристалла излучение и исключать из спектра соответствующие ему случаи неполного поглощения энергии первичного излучения, то можно добиться подавления значительной части комптоновского распределения. Этот принцип используется при создании так называемых сцинтилляционных спектрометров с защитными кристаллами.

Конструкция спектрометра с защитным сцинтиллятором на антисовпадениях в значительной степени определяется характером решаемой задачи и условиями эксперимента, при которых должны производиться измерения. Этим объясняется то обстоятельство, что к настоящему времени разработано и построено большое количество спектрометров антисовпадений самых различных конструкций и назначений. Наиболее полный обзор публикаций по гамма-спектрометрам с защитой антисовпадениями приводится в работе [9].

В нашем спектрометре (рис. 3Б) импульсы, снимаемые с фотомножителей ФЭУ-49, через предусилители и схему сложения подаются на вход управления антисовпадениями 100-канального аплитудного анализатора, на другой вход которого поступают импульсы с анализирующего детектора.

Приведенные гамма-спектры равновесных урана и тория (рис. 9) показывают различие в характере измеренных спектров. Кроме подавления комптоновского распределения, защита антисовпадениями значительно уменьшает интенсивность пиков, соответствующих уходу одного из гамма-квантов каскада за пределы анализирующего кристалла. Общая интенсивность гамма-спектров $U(Ra)$, Th (исключая области фотопиков первичных некаскадных линий: 0,093; 0,165; 0,242; 0,295; 0,352; 1,76 мэв в спектре урана и 0,09; 0,238; 0,908 и 0,960 мэв в спектре тория) при включении схемы антисовпадений уменьшается в 2-3,5 раза. В областях указанных выше некаскадных гамма-линий уменьшение не превышает 20%.

В качестве измерительных каналов (приняты области гамма-спектра: 0,238 мэв (ThB); 0,352 мэв (RaB) и 1,46 мэв (K^{40})). Основные параметры этих областей спектра, а также пороги чувствительности в определении $U(Ra)$, Th , K в однокристалльном режиме и в режиме защиты антисовпадениями приведены в таблице 7, из которой видно, что эффективности регистрации гамма-излучения $U(Ra)$, Th в соответствующих измерительных каналах при включе-

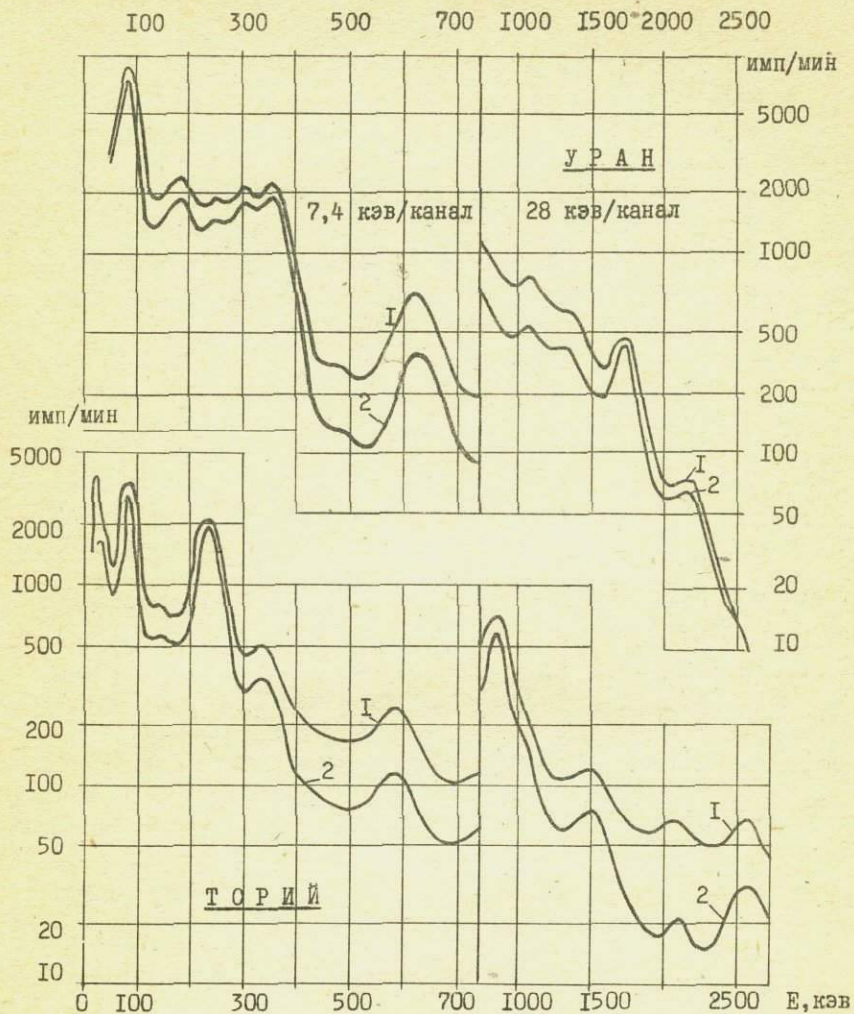


Рис.9 - Аппаратурные спектры урана и тория
 1- без защиты антисовпадениями;
 2 - с защитой антисовпадениями.

Пороги чувствительности для равновесного
 урана и урановые эквиваленты по энергетическим участ-
 кам (кэв) центрального кристалла в обычном режиме (I)
 и с защитой антисовпадениями - режиме ТСАС (II)

Навеска - 30 г; время измерения - 60 мин

Таблица 7

Основные показатели	I			II		
	210- 270	320- 380	1350- 1530	210- 220	320- 380	1350- 1530
Удельная скорость счета I)	1370	1000	171	1065	883	101
Фон датчика, имп/мин	53	28	10,4	30	15	6,0
Чувствительность, г/т ²)	0,915	0,915	3,250	0,885	0,755	4,200
<u>Урановые эквиваленты</u>						
Торий равновесный	0,670	0,207	0,231	0,720	0,154	0,228
Калий, в 10 ⁻⁴	0,600	0,278	6,180	0,535	0,218	10,50

нии схемы антисовпадений уменьшаются на 11,7% и 16% за счет подавления вклада рассеянных в кристалле гамма-квантов более высоких энергий. Уменьшения эффективности регистрации K^{40} в калиевом канале не наблюдаются.

§ 3. МЕТОДИЧЕСКИЕ ВОПРОСЫ АНАЛИЗА НА ОДНОКРИСТАЛЬНОМ СПЕКТРОМЕТРЕ

Чувствительность анализа зависит от многих факторов, которые в той или иной степени освещены в работах Вартанова Н.А. и Самойлова П.С. [9], Егоровы Ю.А. [16], Железновой Е.И., Шумилина И.П., Юфа Б.Я. [17], Якубовича А.Л., Зайцева Е.И., Аносова В.В. [27] и др. [3, 4, 7, 8, 12, 18, 28].

Под порогом чувствительности метода по данному элементу здесь понимается тройная среднеквадратическая ошибка определения элемента при фоновой его концентрации. Математическое выражение порога чувствительности имеется в работах [17, 27].

Ниже обсуждается лишь ряд вопросов, непосредственно влияющих на порог чувствительности метода и выбор рабочих участков спектра.

а). Выбор рабочих участков спектра

Выбор рабочих участков спектра определяется техническими возможностями (величиной кристалла, набором однокристалльных и многоканальных дифференциальных анализаторов и т.д.), весом навески и её общей радиоактивностью. В литературе известны два подхода к выбору рабочих каналов при определении U, Th и K в кларковых и близких к кларковым концентрациях. Использование жесткой части спектра (1,46; 1,76 и 2,62 мэв) и больших кристаллов можно видеть у Адамса Дж.А.С. и др. [28], Якубовича А.Л. и др. [27] используют низкоэнергетическую часть спектра (93; 240; 352 и 1460 кэв) и на небольших кристаллах достигают порога чувствительности, достаточного для анализа многих типов интрузивных пород. Для достижения максимальной чувствительности измерений низких активностей на больших кристаллах (150х100 мм) мы нашли целесообразным включить в урановый и ториевый рабочие каналы несколько аналитических гамма-линий (0,35;

0,61 и 1,76 мэв для U(Ka) и 0,24 и 0,93 мэв для Th), что позволило снизить пороги чувствительности в целом по трем элементам. Для небольших кристаллов использование дополнительных гамма-линий наряду с основными 0,24 и 0,35 мэв не дает существенного снижения порога чувствительности по элементам. Определение U по U_{K_1} (0,09 мэв) при анализе кларковых концентраций нами используется крайне редко по причинам, изложенным ниже.

б). Собственный фон установки (детектора)

Собственный фон установки существенно сказывается при определении U, Th, K в концентрациях, близких к порогам чувствительности метода. Снижение последнего во многом зависит от фона детектора и радиоактивности защиты, ослабляющей излучение окружающих предметов [3]. Исследование отечественных монокристаллов NaJ(Tl) и ФЭУ в отношении их собственной радиоактивности показало, что наименьшей общей радиоактивностью обладают ФЭУ -16, -52, -56, -49, "Канат", "Канифоль", имеющие натриевое стекло С-49-1 (сод.К - 0,03%). Все отечественные монокристаллы упаковываются оптическим стеклом К-8 (сод. К - 5,2%). Содержание калия в самом NaJ часто не превосходит 0,001%, в алюминиевом кожухе - 0,11%, в MgO- до 0,05%. Содержание U и Th в NaJ и конструктивных материалах не превышает 10^{-5} - $10^{-7}\%$. Приведенные содержания U, Th, K определены химическими методами сотрудниками ИГиГ СО АН СССР Э.В.Малысовой, С.М.Солнцевой и проконтролированы непосредственно гамма-спектрометрическим методом [7,8].

Замена стекла К-8 на стекло С-49-1 в упаковке кристаллов позволила получить низкофонные сцинтиллы на базе ФЭУ-52, -56, и -49 с индексами фона 0,10; 0,12 и 0,15 имп/мин на 1 г NaJ(Tl) в диапазоне 0,1-3 мэв. На графике (рис.10) показано изменение собственного фона детектора, полученное в связи со сменой упаковочного стекла, вклад бета-излучения и гамма-излучения калия, содержащегося в стекле марки К-8. Детальное изучение остаточного фона новых сцинтиллов позволило провести

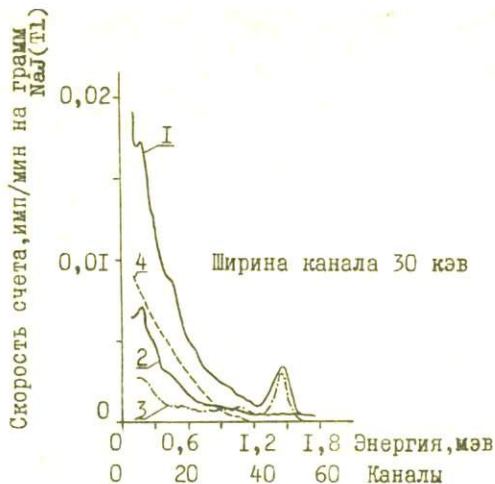


Рис.10 - Фоновые аппаратурные спектры кристалла размером 80x80 мм: 1 - в обычной упаковке (К-8); 2 - в низкофоновой упаковке (С-49-1); 3 и 4 - соответственно, вклады гамма- и бета-излучений диска оптического стекла К-8 (за счет K^{40}) в фоновый спектр.

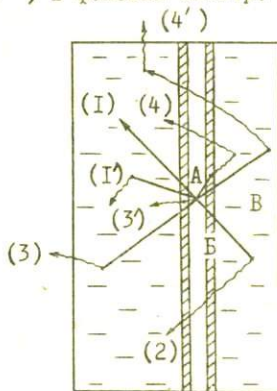


Рис.11 - Возможные варианты взаимодействия гамма-квантов: А - источник в колодце; Б - отражатель ($MgO+Al$); В - кристалл $NaJ(Tl)$. Описание квантов дается в тексте.

дальнейшую интерпретацию фоновых спектров и сравнить их с лучшей низкофоновой установкой, использующей защиту по схеме анти-совпадений (Вогман Н.А. и др. [58]). Достигнутый нами уровень фона наполовину обусловлен радиоактивностью свинца защиты (марка С-00: $U - 0,2 \cdot 10^{-5}\%$ и $Th - 0,6 \cdot 10^{-5}\%$) и загрязнением рабочего объема детектора эманациями и пылью (общее количество $0,1$ мг по U и $0,25$ мг по Th). Собственная радиоактивность детектора в установке Вогман Н.А. и др. [58] не выходит на уровень $(1-2) \cdot 10^{-6}\%$ по U и Th . Таким образом, применение средств защиты от космического излучения, подобно работе Вогман Н.А. и др., целесообразно лишь на том этапе, когда остаточная радиоактивность детектора не будет превышать $0,02$ г/т по U , Th и $0,001\%$ по K .

Измерения космического излучения в диапазонах $1,7-1,9$ и $2,3-2,8$ мэв на водной поверхности больших водоёмов (р.Алдан, Обское море) показали, что применяемая в лаборатории свинцовая защита ($15-20$ см), несмотря на возникающие в ней вторичные излучения, ослабляет в целом космическую составляющую в $6-8$ раз [4].

в). Влияние толщины слоя анализируемой навески

Материал анализируемой навески искажает аппаратурную форму спектра главным образом в диапазоне $0,1-0,3$ мэв за счет обратноотраженного излучения (альbedo). Слой образца горной породы толщиной $13-14$ мм дает дополнительный вклад до $40-50\%$ в единицах спектра образца "нулевой" толщины в указанном диапазоне. Альbedo в горных породах зависит от плотности, и его эффект в значительной степени определяется геометрией измерения. Вместе с альbedo рассеянное в прямом направлении (в направлении детектора) гамма-излучение при толщинах образцов, не превышающих 2 г/см², приводит к накоплению гамма-квантов небольших энергий, не выходящих практически за пределы диапазона $0,1-0,3$ мэв. В целом, комптоновское взаимодействие первичного гамма-излучения ^{226}Ra ($B+C$), ^{232}Th , ^{238}U ($C+C''$) и K^{40} с материалом пробы при малых толщинах (первые г/см²) не приводит к исчезновению гамма-квантов, а лишь способствует перераспре-

делению некоторого количества импульсов из областей фотопиков в область спектра 0,1 - 0,3 мэв. Энергетический диапазон фотоэлектрического эффекта не превосходит 120 - 130 кэв даже в крайних случаях обогащения пробы тяжелыми элементами. Фотоэлектрическое поглощение сопровождается K_{α} -излучением, выход которого очень высок для тяжелых элементов (U, Th, Pb, W). Обогащение горных пород этими элементами встречается крайне редко. Наиболее обычны в составе пород главные элементы породообразующих минералов с атомными номерами 14-56. Лишь элементы типа Zr, Nb, Mo, Cd, In, Sn, Tl, Ba могут существенно ослабить излучение RaD, UX₁ и K_{α} -излучение в распаде RaC, ThC'', MsTh. В противовес этому механизму в горных породах наблюдается более сильный эффект, приводящий к появлению заметного количества низкоэнергетических гамма-квантов в диапазоне до 100 кэв. Это вызвано тормозным излучением за счёт бета-частиц U, Th и особенно K^{40} (соотношение бета-частиц и гамма-квантов равно 7,3:1). Тормозное излучение пропорционально квадрату атомного номера среды.

Начиная со слоя 0,5 г/см², бета-частицы K^{40} полностью поглощаются материалом препарата. Потери энергии на тормозное излучение по приближению Бета и Гайтлера [21] составляют:

$$\frac{(dE / dx)_{\text{изл}}}{(dE / dx)_{\text{столкн}}} = \frac{(E + mc^2)Z}{1600mc^2}; \quad (1)$$

Для калия в средах с Z от 10 до 30 ед. выход тормозного излучения приблизительно меняется с 0,1 до 3% на бета-распад. Если это сопоставить с выходом гамма-излучения K^{40} , то на один гамма-квант с энергией 1,46 мэв будет приходиться от 0,08 до 0,23 тормозных кванта. Вероятность появления тормозного кванта растёт обратно пропорционально энергии кванта, иными словами, этот процесс приводит к появлению низкоэнергетических гамма-лучей, что хорошо видно на аппаратурных спектрах препаратов, содержащих калий (различными химическими солями калия).

В урановых и ториевых излучателях тормозное излучение повышает низкоэнергетическую часть аппаратурных спектров, но заметить его не легко, так как вклад тормозного излучения за

счет бета-излучения в расчете на один гамма-квант для урана примерно в 5 раз, а для тория примерно в 7 раз ниже, чем для калия. К тому же его маскирует сильное рентгеновское излучение $Ra(B+C)$ и $Th(B+C)$. Повышение низкоэнергетической части спектра заметно только в препаратах группы урана (без радия), когда фиксируется слабое гамма-излучение UX_1 . Пик 62,8 кэв находится на более высоком пьедестале по сравнению с пиком $9I_4$ кэв из-за тормозного излучения от бета-частиц UX_2 . Энергия их 2350 кэв, выход 0,9 кванта на распад. Соотношение выходов бета- и гамма-излучений в препарате урана в пользу бета-излучения.

Оба эффекта, проявляющиеся наиболее ярко в области первичного гамма-излучения RaD, UX_1 , а также флуоресцентное K_x -излучение U^{238} и Th^{232} осложняют ведение анализов в низкоэнергетической части спектра. Вероятно поэтому большинство аналитиков за рубежом не используют в настоящее время диапазон 0,09 мэв в анализе кларковых концентраций U, Th, K .

Экспериментальный материал (измерения) показывает, что для принятой нами рабочей толщины препарата 12 мм ($I-I,6 \text{ г/см}^2$) влияние вещественного состава на форму аппаратурных спектров сказывается практически лишь в низкоэнергетической области и не переходит за границу в 210 кэв.

г). Влияние эманационного эффекта на результаты раздельных определений $U(Ka), Th, K$

Потеря части гамма-излучения за счет выхода Rn обычно учитывается при замерах герметизированных и выдержанных во времени объемов пробы или прямым определением (измерением) эманационной способности порошковой пробы. Эти способы хорошо известны. Очень редко при раздельном лабораторном анализе обращается внимание на возможную потерю гамма-излучения за счет выхода Tn . Диффузионная длина Tn в воздухе составляет 2,8 см и на первый взгляд может показаться, что потеря пробой ThB будет несущественной. Однако не следует забывать о конвективном переносе воздушных масс, который постоянно имеет место как в природных, так и в лабораторных условиях. Изучение распределений концентраций Tn над эманацирующим порошком

ториевой руды показало, что в условиях лаборатории возможно такое распределение Tn в воздушном ореоле, при котором даже на высоте 50-60 см над источником концентрация Tn убывает только в 2 раза по сравнению с концентрацией Tn на высоте 2-3 см на пробой. Для полной потери количества ThV , соответствующего количеству свободного Tn , необходимо, чтобы непрерывный вынос Tn продолжался не менее 1,5-2,0 суток. Поэтому точная количественная оценка потеряннного пробой ThV затруднительна, а метод эманационного определения свободного Tn , подобно Rn , оказывается в данном случае непригодным для введения поправок на потерю ThV . Для восстановления ThV до равновесного количества необходима герметизация пробы в течение 5-6 периодов полу-распада ThV , т.е. около 2-2,5 суток.

Определение в незапаянных пробах только трех неизвестных: Ra по $Ra(V+C)$, Th по $Th(V+C)$ и K приводит к завышению Ra и занижению Th в связи с тем, что нарушается радиоактивное соотношение между группой $Th(V+C)$ и $MsTh_2$. Для более правильного ведения анализа следует вводить четвертую неизвестную величину, разбивая ряд тория на две группы излучателей $Th(V+C)$ и $MsTh_2$. Упрощение схемы анализа, т.е. сведение её к отысканию лишь трех неизвестных (Ra, Th, K) требует проведения анализа в герметизированных пробах, либо подбор таких областей спектра, при которых соотношения урановых эквивалентов $Th(V+C)$, $MsTh_2$ мало изменяется. Переход к определению Th по $MsTh_2$ в незапаянных пробах с рядовыми кларковыми концентрациями тория целесообразен при анализе на кристалле больших размеров, например, 150x100мм.

§ 4. ОСОБЕННОСТИ АНАЛИЗА $U(Ra), Th$ И K НА МНОГОКРИСТАЛЛЬНОМ СПЕКТРОМЕТРЕ

а). Двухкристальный спектрометр полного поглощения (ДСПП)

Основное преимущество 4π -кристаллов больших размеров состоит в увеличении как общей эффективности регистрации гамма-квантов (особенно высоких энергий), так и фоточасти за счет перераспределения импульсов из комптоновской части спек-

ра в область пика полного поглощения, т.е. за счет многократно рассеянных в кристаллах гамма-квантов.

Сказанное справедливо для некаскадных гамма-квантов. Увеличение эффективности регистрации отдельных гамма-квантов, входящих в каскад, при геометрии измерений близкой 4π , приводит к увеличению эффекта суммирования, в результате чего амплитуды импульсов от отдельных гамма-квантов складываются и в аппаратном спектре растут пики сумм и комптоновская часть, следующая за пиками сумм в направлении уменьшения энергетической шкалы спектрометра. Этот эффект приводит к относительному уменьшению пиков полного поглощения отдельных гамма-квантов, участвующих в каскадном переходе. В спектрах равновесных урана и тория таковыми являются линии 609, 1120 кэВ (RaC) и 583; 511, 2620 кэВ (ThC'').

На примере каскада, состоящего из двух гамма-квантов, рассмотрим возможные варианты суммирования в кристаллах ДСПП.

Пусть источник активностью A , помещенный в центре колодца между кристаллами (рис. II), излучает в каскаде два гамма-кванта γ_1 , и γ_2 с энергиями E_{γ_1} и E_{γ_2} .

Введем следующие обозначения:

P_i' — количество гамма-квантов γ_1 , теряющих всю свою энергию в результате фотопоглощения или многократного рассеяния в пределах только одного кристалла (однокристалльные взаимодействия) (рис. II; I и I').

P_i'' — количество гамма-квантов γ_1 , теряющих всю свою энергию в результате многократного рассеяния одновременно в объеме обоих кристаллов (двухкристалльные взаимодействия) (рис. II, 2).

Q_i' — количество гамма-квантов γ_1 , теряющих часть своей энергии в результате однокристалльных взаимодействий (рис. II, 3 и 3').

Q_i'' — количество гамма-квантов γ_1 , теряющих часть своей энергии в результате двухкристалльных взаимодействий (рис. II, 4 и 4').

В общем случае полную эффективность и фотоэффективность регистрации гамма-квантов γ_1 обоими кристаллами ДСПП можно записать в виде следующих соотношений.

$$\begin{aligned} \epsilon_i &= \frac{P_i' + P_i'' + Q_i' + Q_i''}{A_i} = \epsilon_i' + \epsilon_i'' \\ \epsilon_{\phi i} &= \frac{P_i' + P_i''}{A_i} = \epsilon_{\phi i}' + \epsilon_{\phi i}'' \end{aligned} \quad (2)$$

где ε_i' и ε_i'' - полные эффективности регистрации гамма-квантов γ_i , испытывших соответственно однокристалльные и двухкристалльные взаимодействия.

$\varepsilon_{\phi i}'$ и $\varepsilon_{\phi i}''$ - фотоэффективности регистрации гамма-квантов γ_i , испытывших соответственно однокристалльные и двухкристалльные взаимодействия.

A_i - количество гамма-квантов γ_i , излучаемых источником в телесном угле 4π .

Если бы не было каскадных переходов, площади пиков полного поглощения гамма-квантов γ_i в однокристалльном ($S_i^{2\pi}$) и двухкристалльном ($S_i^{4\pi}$) режимах измерений были равны:

$$\left. \begin{aligned} S_i^{2\pi} &= \frac{1}{2} A_i (\varepsilon_{\phi i}' - \varepsilon_{\phi i}'') \\ S_i^{4\pi} &= A_i \varepsilon_{\phi i} \end{aligned} \right\} \quad (3)$$

Так как каскадные переходы существуют, имеем для γ_i :

$$\left. \begin{aligned} S_i^{2\pi} &= \frac{1}{2} A_i (\varepsilon_{\phi i}' - \varepsilon_{\phi i}'') (1 - K_2 \Omega_{2\pi}' \varepsilon_2' - K_2 \Omega_{2\pi}'' \varepsilon_2'') \\ S_i^{4\pi} &= A_i \varepsilon_{\phi i} (1 - K_2 \Omega_{4\pi}' \varepsilon_2' - K_2 \Omega_{4\pi}'' \varepsilon_2'') \end{aligned} \right\} \quad (4)$$

где $\Omega_{2\pi}', \Omega_{2\pi}'', \Omega_{4\pi}', \Omega_{4\pi}''$ - стягиваемые кристаллами телесные углы в долях 4π соответственно для однокристалльных и двухкристалльных взаимодействий гамма-квантов, излучаемых источником.

K_2 - относительная вероятность каскадного перехода с энергией $E_{\gamma 2}$.

В режиме двухкристалльного спектрометра (геометрия измерений 4π) $\Omega_{4\pi}' = \Omega_{4\pi}'' = 1$; при измерении на одном кристалле (геометрия измерений 2π) $\Omega_{2\pi}' = \frac{1}{2}$; $\Omega_{2\pi}'' = 1$ (ввиду обратного отражения рассеянных гамма-квантов).

Подставляя значения Ω в (4), получаем:

$$\left. \begin{aligned} S_i^{2\pi} &= \frac{1}{4} A_i (\varepsilon_{\phi i}' - \varepsilon_{\phi i}'') (2 - K_2 \varepsilon_2' - K_2 \varepsilon_2'') \\ S_i^{4\pi} &= A_i \varepsilon_{\phi i} (1 - K_2 \varepsilon_2) \end{aligned} \right\} \quad (5)$$

Выражения (5) получены в предположении отсутствия угловой корреляции между гамма-квантами каскада. Аналогичные выражения можно получить для гамма-квантов γ_2 .

Можно показать, что в случае, когда имеется серия каскадных переходов типа $\gamma_i + \gamma_i$; $\gamma_i + \gamma_2$; ... $\gamma_i + \gamma_n$, соотношения (5) записываются в виде:

$$\left. \begin{aligned} S_i^{2\pi} &= \frac{1}{4} A_i (\varepsilon_{\phi i}' - \varepsilon_{\phi i}'') (2 - \sum_{j=1}^n K_j \varepsilon_j' - \sum_{j=1}^n K_j \varepsilon_j'') \\ S_i^{4\pi} &= A_i \varepsilon_{\phi i} (1 - \sum_{j=1}^n K_j \varepsilon_j) \end{aligned} \right\} \quad (6)$$

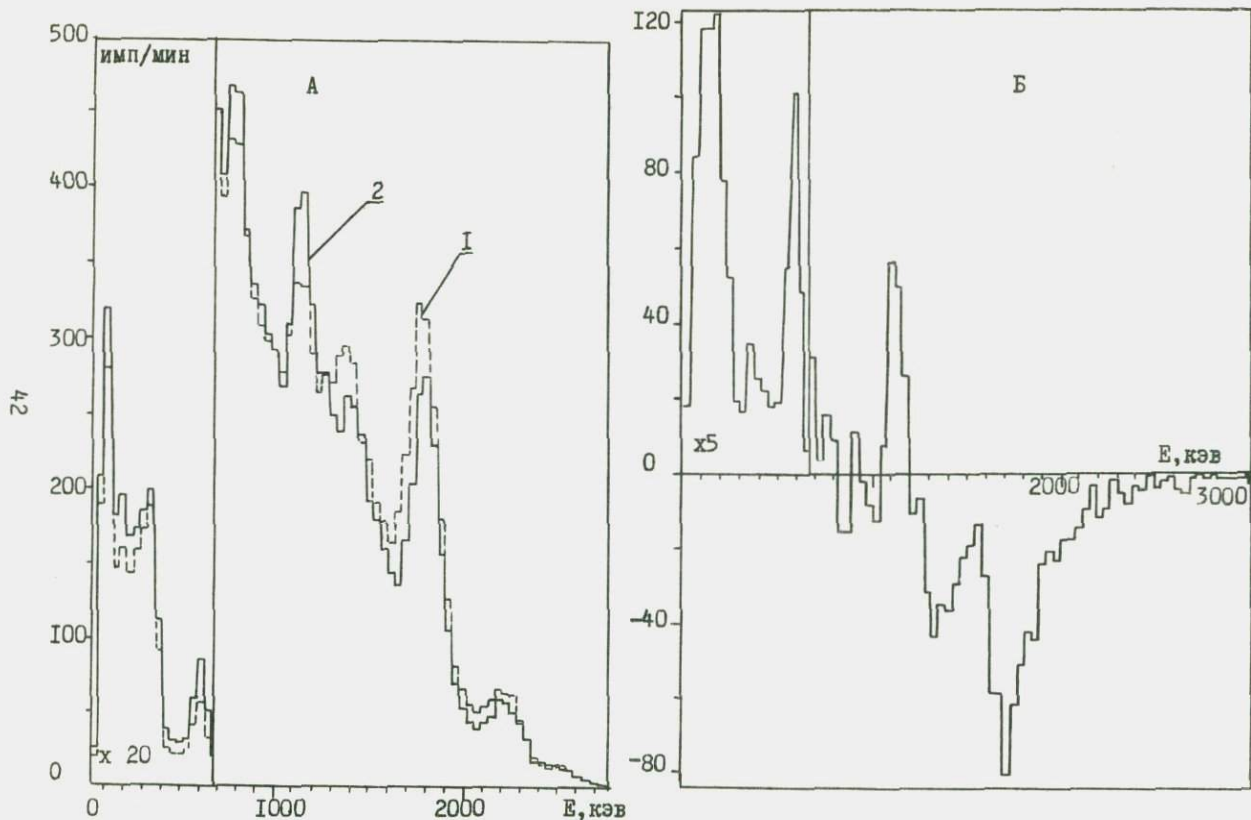


Рис.12 - Аппаратурные спектры (А,Б) равновесного урана, полученные на двухкристальном гамма-спектрометре (кристаллы 150х120 мм), 49 мг равновесного урана. А - суммарные спектры: 1 - сложение на суммирующем усилителе (спектрометр ДСПП), 2 - арифметическая сумма отдельных кристаллов. Б-разность спектров 2 и 1.

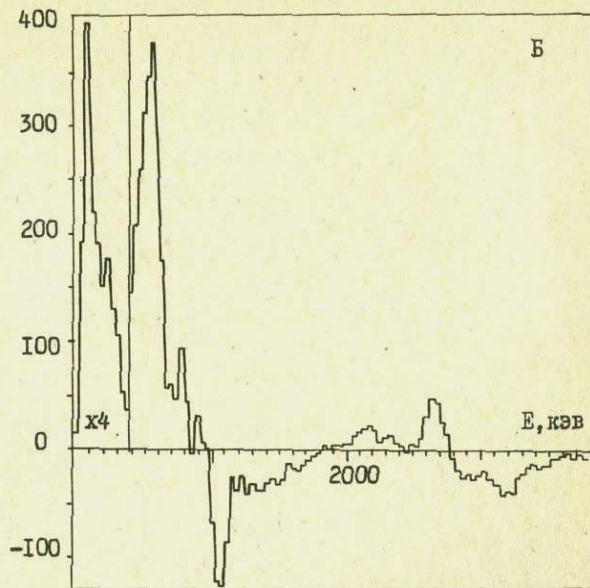
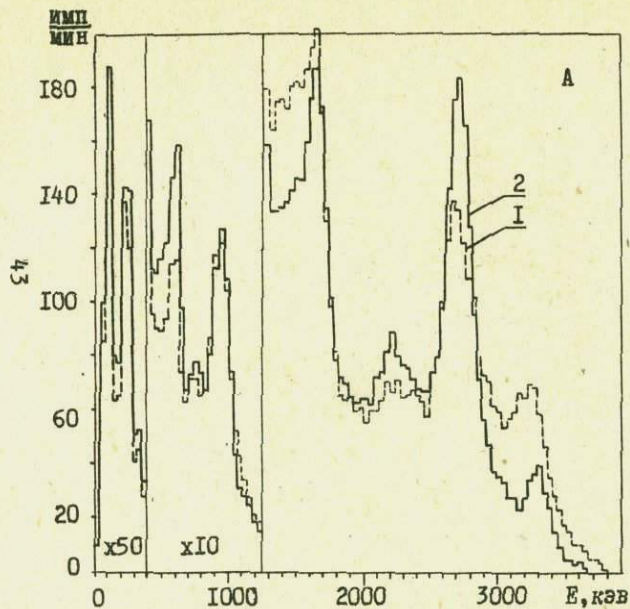


Рис.13 - Аппаратурные спектры тория, полученные на двухкристальном гамма-спектрометре (кристаллы 150x120 мм), 174 мг равновесного тория. А - суммарные спектры: 1 - сложение на суммирующем усилителе (спектрометр ДСП), 2 - арифметическое сложение. Б - разность спектров 2 и 1.

где \mathcal{E}_{ni} - полная эффективность кристаллов ДСПП для гамма-квантов, находящихся в каскаде с γ_i .

\mathcal{E}_{ni}'' - эффективность кристаллов ДСПП для гамма-квантов, находящихся в каскаде с γ_i и испытавших двухкристалльные взаимодействия.

K_j - относительные вероятности j -того каскадного перехода. Из выражений (6) можно найти $\mathcal{E}_{ni}, \mathcal{E}_{ni}''$:

$$\left. \begin{aligned} \mathcal{E}_{ni} &= 1 - B_i S_i^{4\pi} \\ \mathcal{E}_{ni}'' &= 1 - 2C_i S_i^{2\pi} + B_i S_i^{4\pi} \end{aligned} \right\} \quad (7)$$

$$B_i = \frac{1}{A_i \epsilon_{\phi i}}; \quad C_i = \frac{2}{A_i (\epsilon_{\phi i} - \epsilon_{\phi i}'')}$$

По соотношениям (7) рассчитаем полные эффективности регистрации двухкристалльных взаимодействий гамма-квантов, находящихся в распаде с гамма-квантами 0,609 и 1,12 мэв (RaC), кристаллами ДСПП. Для этого воспользуемся аппаратными спектрами равновесного урана и тория (рис. I2а, I2б; I3а, I3б). В качестве источника использовались порошковые препараты, помещенные в цилиндрические пробирки объемом 15 мл. Препарат равновесного урана содержал 49 мг урана, препарат равновесного тория - 174 мг тория.

Спектры в режиме ДСПП сооставлены с суммарными, полученными от арифметического сложения спектров на отдельных кристаллах (однокристалльных спектров, 2π -геометрии). Это сопоставление дано рисунками I2б и I3б. В разностных спектрах отчетливо видно перераспределение амплитуд импульсов, вызванное одновременным (в пределах разрешающего времени спектрометра) поглощением энергии гамма-квантов двумя кристаллами. Положительная часть спектров характеризуется амплитудами импульсов, принимающими участия в суммировании, отрицательная часть - суммарными импульсами. Наряду с линиями 0,609; 1,12 мэв в спектре $\text{U}(\text{Ra})$ и 0,511, 0,58, 2,614 мэв в спектре Th большое участие в суммировании принимают обратно рассеянные гамма-кванты. Среди суммарных пиков можно отметить пики с энергиями 1,76 мэв (0,609+1,12 мэв) в гамма-спектре RaC и 1,09 мэв (0,511+0,580 мэв); 3,2 мэв (0,583+2,62 мэв) в гамма-спек-

ФОТОЭФФЕКТИВНОСТЬ РЕГИСТРАЦИИ ГАММА-ЛИНИЙ
СПЕКТРОМЕТРОМ ДСПИ

Таблица 8

Энергии гамма-кван- тов, МэВ	$S^{4\pi}:A_1$	$S^{2\pi}:A_1$	E_{Φ}
0,238	0,576	0,600	0,57
0,583	0,087	0,143	0,42
0,609	0,122	0,196	0,40
0,907+0,964	0,190	0,190	0,26
1,120	0,026	0,051	0,21
1,260	0,141	0,143	0,14
1,729+1,764	0,143	0,112	0,10
2,614	0,029	0,045	0,08

тре ThC" а также максимумы в областях энергий 0,840 мэв и 1,35 мэв (RaC и ThC), связанные со сложением импульсов от пика полного поглощения одного гамма-кванта с импульсами обратно рассеянных гамма-квантов другой линии каскада.

Количественная оценка эффектов суммирования проведена на основе подсчета фотопиков основных гамма-линий в спектре равновесных урана, тория и калия в двухкристальном (4π) и однокристальном (2π) режимах работы ДСПП (табл.8). Квантовые выходы линий взяты из табл.1.

Значения $\epsilon_{\text{ф},0,609}$, $\epsilon_{\text{ф},1,12}$, $\epsilon_{\text{ф},0,609}''$, $\epsilon_{\text{ф},1,12}''$ можно получить измерением изотопов Cs^{137} и Zn^{65} .

Результаты расчета для каскада 0,609+1,12 мэв приведены в табл.9. Воспользовавшись данными табл.9 можно определить относительный вклад каждого вида взаимодействия гамма-квантов с веществом сцинтиллятора в общее количество регистрируемых гамма-квантов (табл.10) при условии, что $\epsilon_{\text{п},0,609} = \epsilon_{1,12}$ и $\epsilon_{\text{п},1,12} = \epsilon_{0,609}$, что близко к истине.

Точность определения $\epsilon_{\text{п}i}$, $\epsilon_{\text{п}i}''$ оценивалась по формуле для относительной средней квадратической погрешности непрямых измерений

$$\delta(y) = \pm \sqrt{\left(\frac{\partial f}{\partial x_1}\right)^2 \delta x_1^2 + \left(\frac{\partial f}{\partial x_2}\right)^2 \delta x_2^2 + \dots + \left(\frac{\partial f}{\partial x_n}\right)^2 \delta x_n^2} \quad (8)$$

где $\frac{\partial f}{\partial x}$ - частные производные от функции $y = f(x_1, x_2, \dots, x_n)$
 δx - средние квадратические погрешности в определении x .

Из выражений (7) и (8) находим:

$$\delta \epsilon_{\text{п}i} = \pm \frac{B_i S_i^{4\pi}}{1 - B_i S_i^{4\pi}} \sqrt{(\delta B_i)^2 + (\delta S_i^{4\pi})^2} \quad (9)$$

$$\delta \epsilon_{\text{п}i}'' = \pm \frac{B_i}{1 - B_i (2S_i^{2\pi} - S_i^{4\pi})} \sqrt{(2S_i^{2\pi} - S_i^{4\pi})^2 (\delta B_i)^2 + 4(S_i^{2\pi})^2 (\delta S_i^{2\pi})^2 + (S_i^{4\pi})^2 (\delta S_i^{4\pi})^2}$$

Соотношения (9) получены при условии $\epsilon_{\text{ф}i}'' \ll \epsilon_{\text{ф}i}$, что в данном случае имеет место. Величина δB_i зависит от погрешностей в определении площадей фотопиков моноэнергетических гамма-излучений ($\pm 5\%$), точности приведенных в таблице I квантовых выходов для энергий 0,609 и 1,12 мэв ($\pm 10\%$) и составляет по нашим расчетам $\pm 11\%$. Точность измерения площади фотопиков с энергиями 0,609 и 1,12 мэв в спектре RaC была не хуже $\pm 10\%$ при статистических ошибках в определении скоростей счета не превышающих $\pm 2\%$. Учитывая все погрешности измерений получаем:

$$\delta \epsilon_{0,609; 1,12} = \pm (5 + 8) \% \text{ отн.}; \quad \delta \epsilon^{06} = \pm (17 + 23) \% \text{ отн.};$$

ЭКВИВАЛЕНТНОСТЬ РЕГИСТРАЦИИ ГАММА-КВАНТОВ
С ЭНЕРГИЕЙ 0,609 и 1,12 мэв НА ДСПП

Таблица 9

Энергия γ -квантов мэв	$E_{\text{ф}}$	$E_{\text{ф}}^{\text{об}}$	z'	z''
0,609	0,46	0,04	0,68	0,23
1,12	0,30	0,03	0,90	0,25

ОТНОСИТЕЛЬНЫЕ ВКЛАДЫ РАЗЛИЧНЫХ ВЗАИМОДЕЙСТВИЙ
ГАММА-КВАНТОВ С КРИСТАЛЛОМ ДСПП В ОБЩЕЕ КОЛИ-
ЧЕСТВО ЗАРЕГИСТРИРОВАННЫХ ИМПУЛЬСОВ (в %)

Таблица 10

Энергия γ -квантов мэв	P'	P''	q'	q''
0,609	47	4,5	26	23
1,12	40	4,5	26	29

Таким образом, в общем числе взаимодействий гамма-квантов с объемом детектора спектрометра ДСПП, определяющим форму аппаратурных спектров, относительно высокий процент принадлежит отраженным квантам (рассеянным под углами 90° - 270° по отношению первоначального направления кванта).

Вклад суммарных амплитуд импульсов от каскадных линий 0,609 и 1,12 мэв в пик полного поглощения с энергией 1,73 мэв (RaC) можно оценить из следующих соотношений:

$$\left. \begin{aligned} m_{0,609+1,12} &= A_{1,12} \epsilon_{\phi 0,609} \epsilon_{\phi 1,12} \\ m_{1,73+1,76} &= A_{1,76} \epsilon_{\phi 1,76} + A_{1,12} \epsilon_{\phi 0,609} \epsilon_{\phi 1,12} \end{aligned} \right\} \quad (10)$$

Расчет по (10) показывает, что для ДСПП вклад суммарного излучения в фотопик (1,728+1,764) мэв (RaC) оказывается равным 35%.

Влияние эффекта суммирования в спектре равновесного тория сказывается, в основном, в перераспределении амплитуд импульсов, соответствующих пику полного поглощения гамма-квантов с энергией 2,62 мэв и высокоэнергетической части комптоновских квантов в область 2,62-3,6 мэв за счет суммирования с амплитудами импульсов от гамма-квантов сильных и слабых каскадных переходов в распаде ThC'' .

И наконец, сравнение фотопиков наиболее интенсивных и хорошо разрешенных гамма-линий в спектрах $U(Ra), Th, K$ в колодезных кристаллах различных размеров показывает, что в результате каскадных переходов применение ДСПП целесообразно в высокоэнергетической области, выше 1,46 мэв. В таблице II приводятся площади фотопиков в спектрах $U(Ra), Th, K(S_{\phi})$, площади фотопиков моноэнергетических источников гамма-излучения с энергиями гамма-квантов, близкими энергиям изучаемых линий (S_{ϕ}^m), а также их отношение (S_{ϕ}/S_{ϕ}^m) для кристаллов, размеры которых даны в табл. I2. Судя по данным табл. II, уменьшение эффекта суммирования каскадных гамма-квантов в кристаллах малого размера приводит к заметному относительному увеличению площадей фотопиков 0,580, 0,609; 1,12 и 2,62 мэв, характеризующих гамма-излучение RaC, ThC'' , по сравнению с площадями фотопиков монохроматических

ОТНОСИТЕЛЬНЫЕ ПЛОЩАДИ ФОТОПИКОВ ОСНОВНЫХ
ЛИНИЙ γ -ИЗЛУЧЕНИЯ U(Ra), Th, K ДЛЯ 4П - КРИСТАЛЛОВ
ТРЕХ РАЗМЕРОВ

Таблица I1

Энергия γ -квантов МэВ	S_{Φ}			S_{Φ}^m			$S_{\Phi}:S_{\Phi}^m$		
	I	II	III	I	II	III	I	II	III
0,238	0,66	0,87	I	0,67	0,88	I	I	I	I
0,580	0,53	0,69	I	0,24	0,42	I	2,0	1,6	I
0,609	0,54	0,72	I	0,25	0,42	I	2,2	1,7	I
0,908+0,964	0,24	0,46	I	0,21	0,39	I	1,1	1,1	I
1,12	0,45	0,67	I	0,20	0,37	I	2,2	1,8	I
1,46	0,18	0,39	I	0,18	0,39	I	I	I	I
1,729+1,764	0,14	0,30	I	0,17	0,36	I	0,8	0,8	I
2,62	0,27	0,38	I	0,15	0,30	I	1,8	1,3	I

I, II и III - размеры кристаллов, приведенные в таблице I2

РАЗМЕРЫ 4П - КРИСТАЛЛОВ, ХАРАКТЕРИСТИКА
КОТОРЫХ ДАЕТСЯ В ТАБЛИЦЕ

Таблица I2

Тип кристалла	Диаметр кристалла мм	Высота кристалла мм	Диаметр колодца мм	Глубина колодца мм
I	50	50	20	40
II	70	70	20	50
III	150	220	50	150

гамма-квантов таких же энергий. И наоборот, увеличение эффекта суммирования в кристалле больших размеров (ДСПП) приводит к завышению площади фотопика $1,76$ мэв (RaC) за счет суммирования гамма-квантов с энергиями $0,609$ и $1,12$ мэв.

б) Двухкристальный спектрометр совпадений (ДСС)

Основным фактором, снижающим эффективность работы спектрометра в режиме ДСС, является значительный вклад в аппаратурные спектры $U(Ra)$ и Th (рис.8) непрерывного распределения, вызванного главным образом рассеянием гамма-квантов в материале монокристаллов, улавлики и пробы (количественная оценка различных взаимодействий гамма-квантов в объеме двухкристального спектрометра дана выше). Тем не менее спектрометр ДСС обладает следующими достоинствами.

1) Более простой по сравнению со спектрометром ДСПП формой аппаратурных спектров $U(Ra)$ и Th .

2) Высокой избирательностью в определении $U(Ra)$ и Th . Урановый эквивалент Th в наиболее селективной области спектра Ra ($1,76$ мэв) при работе с однокристалльным 4π -спектрометром или ДСПП в 2,5 раза выше по сравнению с ДСС. При измерении в области $2100-2960$ кэв урановый эквивалент его возрастает в десять раз. Избирательность может быть ещё более повышена путем сужения окна управляющего канала, однако это ведет к заметной потере эффективности регистрации.

3) Очень низкой скоростью счета фоновых импульсов (примерно на 2 - 3 порядка ниже чем в режиме ДСПП).

Ввиду указанных достоинств спектрометр ДСС целесообразно использовать при анализе $U(Ra)$ и Th в пробах с искусственным радиоактивным заражением и при выяснении крайних соотношений $U(Ra)$ и Th .

в). Трехкристальный спектрометр антисовпадений (ТСАС)

Сравнение нашего спектрометра с подобными спектрометрами (табл. I3) показывает, что эффективность защиты антисовпадениями в подавлении фоновых импульсов в малой степени зависит от размеров защитного и анализирующего сцинтилляторов в области энергии до 3 мэв. В большинстве работ (и у нас) получено ослабление фона в 2 раза. По всей вероятности, эта цифра характеризуется соотношением внешней (космической) и внутренней (собственной радиоактивностью анализирующего детектора) составляющих фона. Защита антисовпадениями не может быть эффективной для гамма-квантов, связанных с радиоактивными элементами загрязнения в анализирующих кристаллах, фотомножителях и материалах упаковки. Снижение собственной радиоактивности детектора в подобных конструкциях многокристальных спектрометров является решающим условием повышения эффективности метода.

Эффективность защиты антисовпадениями в подавлении комптоновского распределения зависит, главным образом, от размеров и типа экранирующего сцинтиллятора. Для расчета габаритов защитного кристалла можно воспользоваться или полярной диаграммой Альберта Р. Д. [29] или данными по эффективности кристаллов иодистого натрия [9]. Однако кроме размеров защитного кристалла, эффективность защиты антисовпадениями обусловлена также следующими факторами:

1) Полнотой охвата защитным сцинтиллятором анализирующего детектора (приближением геометрии к 4π):

2) Габаритами источника излучения. По мере увеличения размеров источника растет вклад вторичного излучения, рассеянного в материале пробы. Так в работе [58], при измерении вместо точечного источника Zn^{65} его водного раствора объемом 500 мл, подавление непрерывного распределения уменьшилось примерно в полтора раза.

3) Толщиной упаковки защитного кристалла. При больших толщинах упаковки становится заметным как поглощение и рассеяние ею первичных гамма-квантов, так и поглощение ею вторичных гамма-квантов, вылетающих из анализирующего кристалла.

ЭФФЕКТИВНОСТЬ ЗАЩИТЫ АНТИСОВПАДЕНИЯМИ В
ПОДАВЛЕНИИ ВНЕШНЕГО ФОНА И КОМПТОНОВСКОГО РАССЕЯНИЯ

Таблица 13

Детекторы 1)		Источник излучения	Скорость счета 2)		Литература
защитный	анализирующий		I	II	
П 300x264	5Ix45		2,3	3,26	34
П 457x457			2	3,II	37
П 660x760	I27xI27 (к)	Точечный, на дне ко- лодца			
П 920x920	240x240 (к)	Точечный в колодце	3-5	2-3	58
		Водный рас- твор Zn ⁶⁵ в контейнере		I,5-2	
K-2xI27x63,5	25,4x50,8	Внешний		2	43
K-240x220	76x76	Точечный на вершине кристалла	2	4	50
K-2xI50xI10	50xI20 (к) 20xI00	Водный рас- твор Zn ⁶⁵ в пробирке (15 мл)	2	2	

1) Детекторы - П - пластмасса; К - кристалл NaI(Tl); К-2 - геометрия с двумя кристаллами;

К - кристалл с колодцем; размеры везде в мм, первая цифра - диаметр; вторая - высота кристалла (блока).

2) - Скорость счета фоновых импульсов N_{Φ} и комптоновского распределения N_K в режиме антисовпадений;

N_{Φ}' и N_K' - то же, в режиме без антисовпадений;

I - $N_{\Phi}' : N_{\Phi}$ (до 3 мэв); II - $N_K' : N_K$ (для Zn⁶⁵).

Как видно из табл. 13, приведенные в работах [34,37, 43,50,58] типы спектрометров с защитными сцинтилляторами позволили уменьшить комптоновское распределение в гамма-спектре Zn^{65} в 2-5 раз.

В нашем случае преимущество спектрометра ТСАС при анализе $U(Ra)$, Th,K состоит не столько в улучшении соотношения сигнал/фон, сколько в улучшении аппаратурной линии, т.е. в частичном подавлении непрерывного распределения и относительном росте фоточастей некаскадных гамма-линий $U(Ra), Th$, а также линии K^{40} . В результате этого в измерительном канале вклад "мешающих" элементов падает, причем этот эффект тем интенсивнее, чем меньше в канале отношение первичного гамма-излучения "мешающего" элемента к рассеянному в анализирующем кристалле. Наиболее существенное снижение влияния "мешающего" гамма-излучения (в 1,7 раза) происходит в калиевом канале, где вклад радия и тория (за исключением края небольшого по интенсивности фотопика 1,6 мэв в ряду Th) вызван, в основном, комптоновским распределением. Вклады гамма-излучения K и Th в радиевом канале, а также K и $U(Ra)$ в ториевом канале уменьшаются в режиме антисовпадений соответственно в 1,5 и 1,3-1,4 раза.

Относительная низкая эффективность защиты антисовпадениями в подавлении влияния гамма-излучения "мешающих" элементов в ториевом и урановом каналах вызвана следующими причинами:

- а) выбором рабочих участков спектра на $U(Ra)$ и Th (низкоэнергетическая область);
- б) наличием в ториевом канале интенсивного пика $RaB(0,241$ мэв);
- в) относительно невысокой эффективностью регистрации защитным кристаллом жестких гамма-квантов, покидающих центральный кристалл (чем меньше энергия электрона, зарегистрированного в центральном кристалле, тем выше энергия рассеянного гамма кванта, вылетевшего за его пределы);
- г) большим вкладом в область энергий 100-250 кэв гамма-квантов, обратнорассеянных в пробе и упаковке больших кристаллов

Уменьшение вклада в измерительные каналы гамма-излучения "мешающих" элементов привело к увеличению на 20% критерия устойчивости рабочей системы по определению $U(Ra), Th, K$.

Применение защиты антисовпадениями уменьшило также фон центрального детектора в используемых интервалах энергий гамма-спектра в 1,7-1,9 раза. Суммарный эффект от применения защиты антисовпадениями (уменьшение фона и увеличения критерия устойчивости) позволил в нашем случае снизить пороги чувствительности в определении $U(\text{Ra}), \text{Th}, \text{K}$ примерно в 1,5 раза.

§ 5. ПОРОГИ ЧУВСТВИТЕЛЬНОСТИ И ТОЧНОСТЬ АНАЛИЗА $U(\text{Ra}), \text{Th}, \text{K}$ В ПРОБАХ ГОРНЫХ ПОРОД

Обычно лабораторный гамма-спектрометрический анализ $U(\text{Ra}), \text{Th}$ и K в пробах горных пород производится путем измерения скорости счета в трех аналитических областях аппаратурного гамма-спектра. Концентрации радиоактивных элементов находятся из системы трех линейных уравнений.

$$\left. \begin{aligned} A_1 &= q_U + b_1 q_{\text{Th}} + c_1 q_{\text{K}} ; \\ A_2 &= q_U + b_2 q_{\text{Th}} + c_2 q_{\text{K}} ; \\ A_3 &= q_U + b_3 q_{\text{Th}} + c_3 q_{\text{K}} ; \end{aligned} \right\} \quad (11)$$

где A_1, A_2, A_3 - активности проб в трех энергетических интервалах гамма-спектра (каналах) выражение в единицах равновесного урана b и c - урановые эквиваленты Th и K соответственно. q_U, q_{Th} и q_{K} - содержание в пробе $U(\text{Ra}), \text{Th}, \text{K}$. Из уравнений (II) можно перейти к формулам для расчета концентраций:

$$\left. \begin{aligned} q_U &= M_1 A_1 + N_1 A_2 + F_1 A_3 ; \\ q_{\text{Th}} &= M_2 A_1 + N_2 A_2 + F_2 A_3 ; \\ q_{\text{K}} &= M_3 A_1 + N_3 A_2 + F_3 A_3 ; \end{aligned} \right\} \quad (12)$$

Пороги чувствительности анализа или наименьшая величина концентрации, которую можно уверенно измерить, зависят от порогов чувствительности измерений активности и коэффициентов M, N, F , которые в свою очередь являются функциями урановых эквивалентов Th и K (b и c).

$$\left. \begin{aligned} L_{U(\text{Ra})} &= \sqrt{(M_1 L A_1)^2 + (N_1 L A_2)^2 + (F_1 L A_3)^2} ; \\ L_{\text{Th}} &= \sqrt{(M_2 L A_1)^2 + (N_2 L A_2)^2 + (F_2 L A_3)^2} ; \\ L_{\text{K}} &= \sqrt{(M_3 L A_1)^2 + (N_3 L A_2)^2 + (F_3 L A_3)^2} ; \end{aligned} \right\} \quad (13)$$

$$LA_1 = \frac{3}{\eta_1} \sqrt{\frac{2N\Phi}{t}}_1 ; \quad LA_2 = \frac{3}{\eta_2} \sqrt{\frac{2N\Phi}{t}}_2 ; \quad LA_3 = \frac{3}{\eta_3} \sqrt{\frac{2N\Phi}{t}}_3 ;$$

здесь: $L_{U(Ra)}, L_{Th}, L_K$ - пороги чувствительности концентраций $U(Ra), Th, K$;

LA_1, LA_2, LA_3 - пороги чувствительности в измерении активностей;

$N\Phi_1, N\Phi_2, N\Phi_3$ - скорости счета фоновых импульсов в соответствующем участке спектрометра;

t - время измерений.

η_1, η_2, η_3 - чувствительности измерений, равные скорости счета в каналах в единицах концентрации равновесного урана.

Пороги чувствительности зависят от фона и от величин η, M, N, F , входящих в уравнения (13) и в свою очередь являющихся функциями размера кристалла, выбранного сочетания аналитических областей гамма-спектра, веса проб и геометрии измерений. В практике лабораторного гамма-спектрометрического анализа U, Th, K обычно используются следующие сочетания энергетических интервалов гамма-спектра.

а) 0,240 мэв (ThB); 0,350 мэв (RaB); 1,46 мэв (K^{40});

б) 0,609 мэв (RaC); 0,930 мэв ($MsTh_2$); 1,46 мэв (K^{40});

в) 1,46 мэв (K^{40}); 1,76 мэв (RaC); 2,62 мэв (ThC).

Выбор сочетания энергетических интервалов производится таким образом, чтобы обеспечить наибольшую устойчивость системы уравнений (II), т.е. добиться минимально возможных ошибок в определении содержаний из-за погрешностей значений A, b и c , с одной стороны, и необходимый порог чувствительности, с другой. Устойчивость системы тем выше, чем больше измеренная активность в энергетическом интервале спектра характеризует гамма-излучение одного элемента и чем меньше влияние гамма-излучения других элементов. Критерием устойчивости решения (II) относительно ошибок определения активностей A и коэффициентов b и c в исходной системе (II) может служить выражение, предложенное в работе [1]:

$$y = 1 - \frac{b_2c_3 + b_1c_2 + c_1b_3}{b_3c_2 + b_1c_3 + c_1b_2}; \quad (14)$$

Для однокристалльных спектрометров небольших размеров и для ТСАС выбор рабочих интервалов однозначен. Для $U(Ra), Th$

это низкоэнергетическая область, для К - неизменно участок с энергией 1,46 мэв (K^{40}). Пороги чувствительности для этих спектрометров даны в таблице I4. Исходные данные взяты из таблиц 3 и 7.

Для спектрометра ДСПП можно рассмотреть три варианта:
а) низкоэнергетический; б) среднеэнергетический; в) высокоэнергетический (табл. I5).

Сочетание, использующее энергетические участки в средней части гамма-спектра U(Ra), Th, характеризуется наихудшими величинами **У** и **Л**. Характеристики соотношений энергетических участков в низкой и высокой частях гамма-спектра (а и в) в значительной степени противоречивы. При измерениях, не требующих низких порогов чувствительности, сочетание "а" предпочтительнее в связи с очень хорошим критерием устойчивости, и наоборот, в случае измерений очень малых концентраций желателен использовать низкоэнергетическое сочетание участков спектра.

Преимуществом сочетания "а" является более высокая по сравнению с сочетанием "в" чувствительность определения U(Ra),

Th, K. Однако ввиду больших толщин анализируемого материала (при 500 гр. навесках диаметр контейнера равен 50 мм) на результаты измерений в низкоэнергетической части гамма-спектра заметное влияние оказывает вещественный состав и насыпная плотность проб. Такое влияние обусловлено не только самопоглощением и рассеянием первичного гамма-излучения в пробе, но и ослаблением обратнорассеянного гамма-излучения от кристаллов и их упаковки.

Оценим статистические погрешности определений U(Ra), Th в двух сочетаниях энергетических участков. Формулы для расчета содержаний U(Ra), Th и K при анализе на ДСПП имеют следующий вид.

Низкоэнергетическое сочетание (а)

$$\left. \begin{aligned} a_U &= (- 0,055N_1 + 0,144N_2 - 0,016N_3) \frac{1}{P} \cdot 10^{-2}\% \\ a_{Th} &= (+ 0,230N_1 - 0,160N_2 - 0,035N_3) \frac{1}{P} \cdot 10^{-2}\% \\ a_K &= (+ 0,007N_1 - 0,110N_2 + 0,435N_3) \frac{1}{P} \cdot 10^{-2}\% \end{aligned} \right\} (15)$$

ПОРОГИ ЧУВСТВИТЕЛЬНОСТИ ПРИ ОПРЕДЕЛЕНИИ
СОДЕРЖАНИЙ U (Ra), T_h (г/т) и K (%) (время
измерения - 60 мин)

Таблица 14

Детектор размер кристалла и режим работы	Навеска г	Пороги чувствительности				Крите- рий устой- чив. (γ)
		U (Ra)	T_h	K	$U(UX_1)$	
50x80	400	0,20	0,30	0,08	-	0,68
80x80	20	1,05	2,20	0,58	3,8	0,80
50x120 (к)в обыч- ном режиме	30	1,8	3,5	0,73	-	0,63
50x120 (к)в режи- ме ТСАС	30	1,2	2,6	0,52	-	0,73

(к) - кристалл с колодцем

ПОРОГИ ЧУВСТВИТЕЛЬНОСТИ ДСПП ДЛЯ U (Ra), T_h
(г/т) и K (%) ПРИ РАЗЛИЧНЫХ ВАРИАНТАХ РАБОЧИХ
ДИАПАЗОНОВ СПЕКТРА (а,б,в)

Время измерения - 60 мин, навеска - 500 г

Таблица 15

Варианты	Пороги чувствительности (L)			Критерий устойчи- вости (γ)
	U (Ra)	T_h	K	
а	0,19	0,42	0,04	0,66
б	0,52	0,80	0,07	0,52
в	0,50	0,60	0,06	0,98

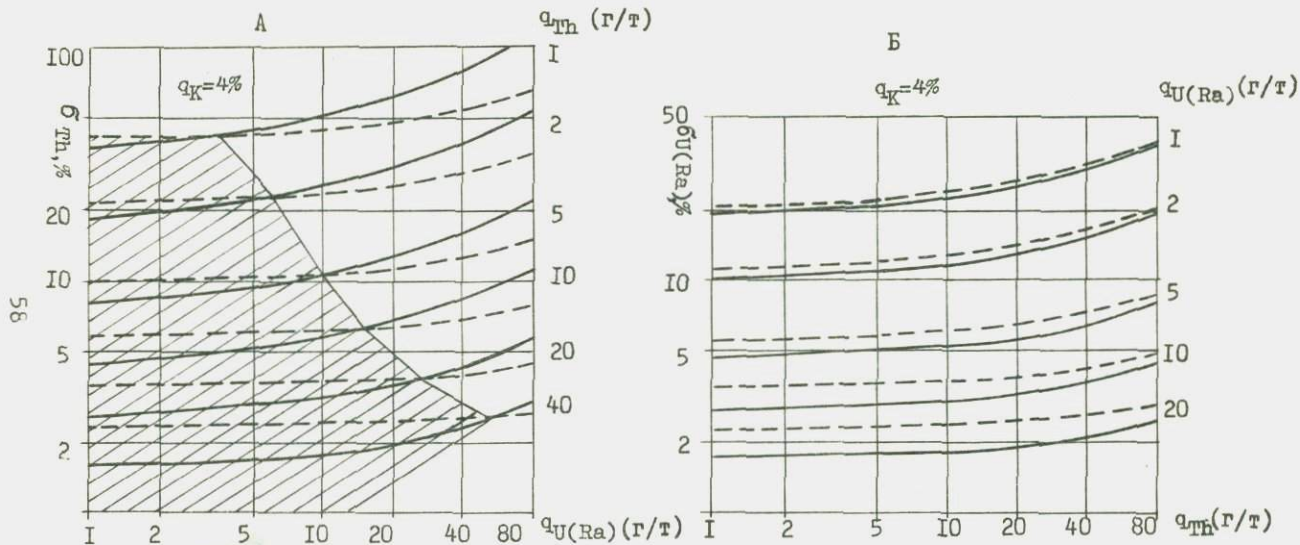


Рис.14 - Зависимости относительной средней квадратической погрешности определений: А - Th от содержания U(Ra) и Th ; Б - U(Ra) от содержания Th и U(Ra). Концентрация K постоянна и равна 4%. Пунктир - измерения в высокоэнергетической части спектра (1,46; 1,76; 2,62 мэв); сплошная линия - измерения в низкоэнергетической части спектра (0,238; 0,352; 1,46 мэв). Заштрихована область концентраций U(Ra) и Th, где погрешность анализа Th в низкоэнергетической части меньше таковой в высокоэнергетической части спектра.

$$\left. \begin{aligned} q_U &= (0,44N_2 - 0,11N_3) \frac{1}{P} \cdot 10^{-2}\% \\ q_{Th} &= (0,88N_3 - 0,07N_2) \frac{1}{P} \cdot 10^{-2}\% \\ q_K &= (-0,08N_3 - 0,42N_2 + 0,42N_1) \frac{1}{P} \cdot 10^{-2} \end{aligned} \right\} (16)$$

где P - вес проб в гр.

Относительная средняя квадратическая ошибка в определении содержаний элементов σ_{jq} находится по известной формуле (17)

$$\sigma_{jq} = \frac{\sqrt{\sum_{i=1}^3 (a_{ji} N_i)^2}}{jq}; \quad \sigma_{N_i} = \sqrt{\frac{N_{ni}}{t_n} + \frac{N_{fi}}{t_\phi}}; \quad (17)$$

Здесь N_n и N_ϕ - скорости счета пробы и фона в i-том канале (участке гамма-спектра).

t_n и t_ϕ - время измерения пробы и фона;

a_{ji} - коэффициенты в формулах (15) и (16);

σ_{N_i} - средняя квадратическая ошибка измерения скорости счета в i-том канале.

При помощи выражения (17) нами рассчитаны зависимости относительных средних квадратических погрешностей измерения $U(Ra)$ и Th от содержаний этих элементов и K, характерных для проб гранитного состава (рис. I4). Скорости счета в каналах рассчитывались по системе (II) для различных значений q_U и q_{Th} и $q_K = \text{Const}$ (4%). Время измерения проб принято равным 10 мин, время измерения фона $t_\phi = 60$ мин. Как видно из рис. I4а точность определения Th при использовании сочетания "а" в значительно большей степени зависит от концентраций $U(Ra)$, чем в сочетании "в", ввиду чего преимущество в чувствительности низкоэнергетической части гамма-спектра ограничивается отношениями $Th:U(Ra)$, лежащими в пределах от 0,3 для $q_{Th} = 1 \cdot 10^{-4}\%$ до 0,8 для $q_{Th} = 4 \cdot 10^{-3}\%$ (заштрихованная область рис. I4а). Однако даже для благоприятных отношений $Th:U(Ra)$ преимущество сочетания "а" в точности определения становится незначительным при отношении $Th:K \leq 1 \cdot 10^{-4}$. Наиболее благоприятными при измерении Th в сочетании "а" являются отношения $Th:K > 1 \cdot 10^{-4}$; $Th:U > 1$ Влияние Th на определение $U(Ra)$ (рис. I4б) почти одинаково в обоих сочетаниях областей гамма-спектра в диапазоне

концентраций Th от $1 \cdot 10^{-4}\%$ до $1 \cdot 10^{-2}\%$ и U(Ra) от $1 \cdot 10^{-4}\%$ до $2 \cdot 10^{-3}\%$. Влияние калия на измерение U(Ra) в низкоэнергетической части гамма-спектра приводит к тому, что при уменьшении отношения U:Th, точность определения U(Ra) в сочетании "а" приближается к точности измерения его в сочетании "в" и становится примерно равной ей (см., например, для U:Th = 0,25).

В результате проведенного анализа можно сделать следующие выводы:

- 1) при проведении гамма-спектрометрического анализа U(Ra), Th, K на ДСПП желательна комплексное использование низко- и высоко-энергетических участков гамма-спектра (измерение в шести каналах);
- 2) выбор более точного результата из двух, измеренных в разных областях гамма-спектра, можно сделать произведя качественную оценку отношения элементов (Th:U, K:U);
- 3) в случае отношений элементов, благоприятных для измерения в низкоэнергетической части гамма-спектра результаты, полученные в жесткой части гамма-спектра, можно использовать для контроля влияния вещественного состава и насыпной плотности проб.

И наконец, данные табл.5 позволяют подсчитать порог чувствительности однокристалльного низкофонового детектора на базе кристалла размером 150x100 мм при навеске пробы до 1500 граммов, облегающей всю поверхность кристалла слоем 12-15 мм.

Поскольку в данной геометрии среднеэнергетическая часть спектра остается достаточно эффективной (слабо сказывается суммирование каскадных квантов), а толщина пробы не является существенной помехой в отношении ограничения выбора энергетического диапазона, целесообразно использование семи участков спектра как при определении U(Ra), Th, K, так и U(Ra), Th(B+C), MsTh₂, K. Участки спектра группируются по элементам. Так, например, участки 210-270; 810-890 и 2530-2860 кэВ используются при подсчете Th (или Th(B+C) и MsTh₂); участки 263-365; 540-660 и 1670-1840 кэВ для определения U(Ra) и участок 1380-1560 кэВ для определения K. Решается система либо из 3-х неизвестных, либо из 4-х неизвестных.

Пороги чувствительности для такого варианта следующие (t=60мин):

U(Ra)	- 0,7 $10^{-5}\%$;
Th	- 1,6 $10^{-5}\%$;
K	- 0,02 % ;
MsTh(в ед. Th)	- 6,9 $10^{-5}\%$;

Заключение

В данной работе нам не удалось вскрыть все потенциальные возможности метода. Следует заметить, что как конструктивные, так и защитные материалы, а также само помещение (его фон) далеко не идеальны в отношении собственной радиоактивности и дают ещё весьма ощутимый вклад в фон детекторов. Сама конструкция упаковки монокристаллов, особенно для многокристального спектрометра, оставляет желать лучшего. Большая толщина отражателя MgO в рабочем кристалле существенно сказывается в перераспределении гамма-квантов, что влечет за собой некоторую потерю полезной информации. Размер кристаллов остается малым для гамма-излучения линии $2,614$ кэв (ThC''), чтобы в полной мере использовать каскадное свойство излучения ThC'' . Электронная схема сбора информации во многокристальном спектрометре, особенно в режиме ДСС, может и должна быть улучшена. Это и есть те пути, по которым авторы продолжают исследования.

Практика показывает, что достигнутая чувствительность данного комплекса обеспечивает экспрессное определение ЕРЭ в большинстве типов пород. Однако, дальнейшее повышение производительности гамма-спектрометрического анализа во многом зависит от способа и скорости вывода информации и её обработки, в связи с чем одной из главнейших задач на будущее авторы считают необходимость сопряжения измерительных установок с вычислительными устройствами.

Авторы отмечают, что великолепные по качеству монокристаллы получены благодаря усилиям Павлова Ю.П., Балугиной Н.М., Маргацкого Е.Н.. Эти кристаллы оказали решающее влияние на улучшение метода и разработку его новых модификаций.

Авторы неоднократно получали консультации по физическим основам метода у Троицкого С.Г., Юфы Б.Я., Жаворонкова В.Я., Карташова Н.П., Сердюковой Г.С., Железновой Е.И..

Техническое осуществление установок, их монтаж, пуск и наладка осуществлялись с помощью Молочаева И.П. и Степина А.С. В оформлении работы принимали участие Верховская В.П. и Радостева Н.Е..

Авторы выражают всем этим товарищам глубокую признательность.

Л и т е р а т у р а

1. Аэрогамма-спектрометрический метод поисков месторождений урановых руд (Методические руководствo). Министерство геол. СССР, 1967.
2. Башилов А.А., Дзепелов Б.С. и Червинская А.С. Конверсионный спектр RaD . Изв.АН СССР сер.физич., 17, №4, 1953.
3. Белле Ю.С., Лебедев О.В., Спирин В.Д. Фон сцинтилляционных детекторов и пути его снижения. Доклад на У Всесоюзной конференции по синтезу, производству и использованию сцинтилляторов, ВНИИМ, Харьков, июнь, 1968.
4. Бобров В.А. Усовершенствование гамма-спектрометрического метода и возможности его использования в геологии. Кандидатская диссертация, Новосибирск, 1969.
5. Бобров В.А. Квантовые выходы гамма-излучения уранового и ториевого рядов. В сб. "Проблемы региональной геологии и петрографии и методы геохимических и геофизических исследований", Изд-во "Наука" СО, Новосибирск, 1969
6. Бобров В.А., Казакевич Г.М. Экспериментальное определение квантового выхода рентгеновского K_{α} -излучения в естественном радиоактивном распаде урана и тория. В сб. "Проблемы региональной геологии и петрографии и методы геохимических и геофизических исследований". Изд-во "Наука" СО, Новосибирск, 1969.
7. Бобров В.А., Гофман А.М., Кренделев Ф.П., Балугина Н.М., Маргацкий Е.К., Павлов Ю.П. Низкофоновые сцинтиллоки. В сб. "Монокристаллы, сцинтилляторы и органические люминофоры". Харьков, вып.5, часть 2 (в печати).
8. Бобров В.А., Малясова Э.В., Солнцева С.М., Карпов Ю.М., Павлов Ю.П. Радиоактивность сырья и конструктивных материалов сцинтилляционного счетчика. В сб. "Монокристаллы, сцинтилляторы и органические люминофоры". Харьков, 1969, вып.5, часть 1.
9. Вартанов Н.А., Самойлов П.С. Прикладная сцинтилляционная гамма-спектрометрия. М., Атомиздат, 1969.
10. Витман В.Д., Дзепелов Б.С., Каран А.А. Относительные интенсивности γ -лучей RaC в области энергий 1300-2500. Изв. АН СССР, сер.физич. 25, №2, 1961.

11. Гофман А.М. Исследование кор выветривания радиогеохимическими методами (на примере кор выветривания гранитоидов и серпентинитов Южного Урала). Кандидатская диссертация, Новосибирск, 1971.
12. Гофман А.М. Измерение концентраций естественных радиоактивных элементов в кристаллах NaJ(Tl) с колодезцем. В сб. "Проблемы региональной геологии и петрографии и методы геохимических и геофизических исследований". Изд-во "Наука" СО, Новосибирск, 1969.
13. Гусев Н.Г., Машкович В.П., Вербицкий Б.В. Радиоактивные изотопы как гамма-излучатели. М., Атомиздат, 1964.
14. Желепов Б.С., Пекер Л.К., Сергеев В.О. Схемы распада радиоактивных ядер. М., Изд-во АН СССР, 1963.
15. Желепов Б.С., Жуковский Н.Н., Учеваткин И.Ф., Шестопалов С.А., Новые данные об относительных интенсивностях γ -линий Ra , находящегося в равновесии с продуктами распада. Изв. АН СССР, сер. физич., 22, №7, 1958.
16. Егоров Ю.А. Сцинтилляционный метод спектрометрии гамма-излучения и быстрых нейтронов. М., Госатомиздат, 1963.
17. Железнова Е.И., Шумилин И.П., Юфа Б.Я. Радиометрические методы анализа естественных радиоактивных элементов М., Недра, 1968.
18. Кренделев Ф.П., Бобров В.А. Кларковые содержания урана, тория и калия в корах выветривания кислых изверженных и метаморфических пород Енисейского кряжа. В сб. "Геохимия и минералогия радиоактивных элементов Сибири". Изд-во "Наука" СО, Новосибирск, 1970.
19. Крисюк Э.М., Сергеев А.Г., Латышев Г.Д., Ильин К.И., Фадеев В.И. Схема распада RaC . Ж. эксперимент. и теор. физики, 33, №5, 1144, 1957.
20. Листенгартен М.А. Оже-эффект. Изв. АН СССР, сер. физич., 24, №9, 1960.

21. Пауль В., Штейнвендель Х. Взаимодействие электронов с веществом. В книге: "Бета-и гамма-спектроскопия". Под редакцией Зигбана К.М. Физматгиз, М., 1959,
22. Роуз М.Э. Теория внутренней конверсии. В книге: "Бета-и гамма-спектроскопия". Под редакцией Зигбана К.М. Физматгиз, М., 1959.
23. Сисигина Т.И. Спектральный состав гамма-излучения элементов семейства урана и тория. Изв. АН СССР, сер. геофизич. 12, 1957.
24. Слив А.А., Банд И.Я. Таблицы коэффициентов внутренней конверсии на К-оболочке с учетом конечных размеров ядра и экранирования. Ж. эксперим. и теорет. физики, 31, 134, 1956.
25. Справочные таблицы по рентгеновской спектроскопии, М. Изд-во АН СССР, 1953
26. Хультивист Б. Ионизирующее излучение естественных источников И.Л., М., 1959.
27. Якубович А.Л., Зайцев Е.И., Аносов В.В. Многоканальный радиометрический анализ горных пород с помощью сцинтилляционной установки ЛСУ-5К. Атомная энергия, т. 15, вып. 3, 1963
28. Adams J.A.S., Weaver C.E. Thorium to uranium ratios as indicators of sedimentary processes: example of concept of geochemical facies. Amer. of petrol. geol. Bull., v. 42, №2, pp 387-439, 1958.
29. Albert R.D. A gamma-ray spectrometer with anticoincidence shielding. Rev. Scient. Instr., 24, 1096 (1953).
30. Asaro F., Stephens F., Perlman I. Complex Alpha Spectra of Radiothorium (Th^{228}) and Thorium-X (Ra^{224}). Physical review, v. 92, №6, 1495 (1953).
31. Bayman B.F., Ross M.A.S. A Nuclear Emulsion Study of the Radioactive Decay of Actinium X (Ra^{223}). Proc. Phys. Soc., 68A, 110, 1955.
32. Bishop G.R., -A contribution to the establishment of the level scheme of radium C'. Nuclear Physics, v. 5, 358, 1958.

33. Brodie W.D. Lens Spectrometer Study of the Disintegration of MsTh_2 . Proc. Phys. Soc., 67A, 265, 1954.
34. Busuoli G., Melandri C., Rimondi O., Righini B. A Compton gamma-rays spectrometer; utilization of the a. c. shield as a well type counter. Nucl. Instr. and Meth., 22, 2, 324, 1963.
35. Damon P.E. and Edwards R.R. Absolute Intensities of the Gamma-Rays and X-Rays of Radium D. Physical Review, v. 95, 1698, 1954.
36. Daniel H. Intensitätsarme Übergänge beim Zerfall von RaC , RaC'' und ThC'' . Zeitschrift für Naturforschung, 12a, 194, 1957.
37. Ellett W.H., Brownell G.L. A total absorption gamma-ray spectrometer combining sodium iodide and plastic scintillators. Nucl. Instr. and Meth., 7, № 1, 1960.
38. Elliott L.G., Graham R., Walker J., Wolfson I.L. Spin and Parities of Energy Levels in Pb^{208} . Physical Review, v. 93, № 2, 356, 1954.
39. Emery G.T. and Kane W.R. Gamma-Ray Intensities in Thorium Active Deposit. Physical Review, v. 118, 755, 1960.
40. Giannini M., Prospero P., Scint S. Investigation on the decay scheme of ThC (Bi^{212}). Nuclear Physics, v. 19, 380, 1960.
41. Iuric M., Stanojevic D., 1955 (в книге Дзепелова Б.С., Пекера Л.К., и Сергеева В.О. Схемы распада радиоактивных ядер, М., 1963)
42. Johansson S.A.E. Decay of UX_1 , UX_2 and UZ . Physical Review, v. 96, 1075, 1954.
43. Kalish Y., Nardi E. A three crystal NaJ(Tl) gamma-ray scintillation spectrometer. Nucl. Instr. and Meth., 26, № 2, 329-332, 1964.
44. Kyles I., Campbell C.G. and Henderson W.I. An Investigation of the beta-particle Spectrum of Mesothorium 2. Proc. Phys. Soc., 66A, 519, 1953.

45. Mayer- Börjke C., Lühre G. Zur Interpretation der nieder-angeregten Zustände von Po^{214} (RaC'). Zeitschrift für Naturforschung , 15a , 103 , 1960 .
46. Mladjenovic M., Hedgran A. An investigation of the Compton secondaries from RaC gamma-rays . Arkiv Fysik , 8 , 49 , 1954.
47. Nielson K.O., Nielson O.B., Waggoner M.A. Internal conversion coefficients for M1 transitions in ${}_{83}Bi^{214}$, Po^{214} and Bi^{212} . Nuclear Physics , v. 2 , 476 , 1957 .
48. Ong Ping Hok , Vershoor I., Born P. Rotational Levels in the Beta-Decay of Protoactinium Isotopes. Physical Review, v 99, 1613, 1955 .
49. Paul H., Warhanck H., - Zum Zerfallsschema des AcX(Ra²²³). Helv.Phys.acta, 30, 272, 1957.
50. Perkins R.W., Neisen J.M., Diebel R.N., - Total absorption gamma-ray spectrometers utilizing anticoincidence shielding. Rev.Scient. Instr ., 31 , № 19 , 1344-1349 , 1960 .
51. Rosenblum S., Valadaris M., Guillot M. Les spectres d'électrons de conversion émis dans les transmutations radiotorium, thorium , thorium X , thoron . J. Phys. Rad., 15,129 , 1954.
52. Roy R.R., Goes M.L. Sur la désintégration du radium . Compt. Rend., 238 , 469 , 1954 .
53. Shupp G., Daniel H., Eakins G. W. and Jenes E.N. Transition Intensities in the Tl^{208} Beta Decay , the $Bi^{212} \rightarrow Po^{212}$ Decay scheme and the Bi^{212} Branching Ratio. Physical Review , v. 120 , 189 , 1960 .
54. Stephens F.S., Asaro F., Perlman J. Odd-Parity Rotational Bands in Even-Even Nuclei . Physical Review , v. 107 , 1091, 1957 .
55. Strominger D., Hollander I.M. and Seaborg G.T. Table of Isotopes . Revs. Mod. Phys ., 30,585, 1958 .
56. Victor C., Teielae J., Falk-Vairant P. et Bouissieres G. Etude des transitions γ de 188 kev du et de 87 kev du RTh. J. Phys. Rad., 13 , 565, 1952 .

57. Weale J.W. Alpha-Gamma Angular Correlations and Internal Conversion Measurements in ThC'' and ThC'D'. Proc. Phys. Soc., 68A, 35, 1955.
58. Wogman N.A., Robertson D.E. and Perkins R.W. A large well crystal with anticoincidence shielding. Health physics, v. 13, No 7, 1967.

Технический редактор *Л. А. Панина*

Подписано к печати 29. VII. 1971 г. МН 03595
Бумага 60x84/16. Печ. л. 4, 25. Уч.-изд. л. 3, 88.
Тираж 500. Заказ 284. Цена 27 коп.

Институт геологии и геофизики СО АН СССР
Новосибирск, 90. Ротапринт.

Цена 27 коп.

1946