

МОДЕЛИРОВАНИЕ ЭКСПЕРИМЕНТОВ С ПОМОЩЬЮ ДЕТЕКТОРОВ ГАММА-ИЗЛУЧЕНИЯ НА ОСНОВЕ СЖАТОГО КСЕНОНА.

Даниленко В.Н., Ковальский Е.А., Скубо Ю.В., Соловьева С.Л., Федоровский С.Ю. (ООО «Лаборатория спектрометрии и радиометрии»), Берлизов А.Н. (ИЯИ НАН Украины), Власик К.Ф., Грачев В.М., Дмитренко В. В., Улин С. Е., Утешев З. М., Чернышева И.В. (МИФИ)

Метод Монте-Карло давно и успешно используют для моделирования спектров. Одно из приложений, разработанное на этой основе, - виртуальная гамма-спектрометрическая лаборатория GammaLab [1, 2], которая позволяет моделировать спектры точечных и объемных источников произвольного радионуклидного состава, полученных с помощью полупроводниковых и сцинтилляционных детекторов.

Детекторы нового типа на основе LaBr, LaCl или сжатого ксенона, разработанного в МИФИ [3, 4], уступают в разрешении детекторам на основе особо чистого германия, но лишены таких недостатков, как низкотемпературное охлаждение и высокая стоимость, и примерно в 5 раз превосходят по разрешению сцинтилляционные NaI-детекторы.

В настоящей статье проанализированы возможности гамма-спектрометров на основе сжатого ксенона для количественного анализа образцов сложного радионуклидного состава с применением комплекса GammaLab, изложены принципы и результаты моделирования экспериментов с помощью детектора γ -излучения на основе сжатого ксенона.

Моделирование заключается в расчете спектра излучения источника в точке расположения детектора, его преобразовании с учетом аппаратурных эффектов и передаче во внешнюю программу для отображения и дальнейшей обработки. Одним из возможных вариантов решения этой задачи является розыгрыш методом Монте-Карло цепочки распада радионуклида и переноса излучения в веществе контейнера и детектора. Такой способ приводит к длительным расчетам спектра каждого источника и не позволяет повторно использовать результаты вычислений.

В настоящей работе применена схема с использованием подхода [5], которая заключается в построении универсальных функций отклика детектора на моноэнергетическое излучение, не зависящих от углового и пространственного распределения регистрируемого излучения. Матрица отклика детектора рассчитывается один раз методом Монте-Карло. Тогда аппаратный спектр источника представляет собой ее свертку с рассчитанным физическим спектром в точке расположения детектора. Такой подход позволяет сократить вычисления и использовать одну и ту же матрицу отклика для разных источников, но не снимает вопроса о повторном пересчете физического спектра для конкретного радионуклидного состава.

Для решения этой проблемы введено понятие «образца» - геометрии измерения, в которой на сетке энергии методом Монте-Карло рассчитывается физический спектр моноэнергетического излучения. Физический спектр заданного радионуклидного состава можно представить как суперпозицию спектров монолиний в соответствии с интенсивностью линий излучения источника. Такой подход позволяет рассчитать один раз набор физических спектров монолиний на сетке энергии для конкретной геометрии, например, контейнера с нужными параметрами, затем проводить достаточно быстрые по времени операции интерполяции и суперпозиции с использованием данных о радиоактивном распаде для получения физического спектра конкретного источника.

Поскольку расчеты методом Монте-Карло занимают длительное время, разработана процедура быстрого моделирования спектра в режиме реального времени с учетом конкретного положения и ориентации спектрометра относительно источника излучения.

Изложенные принципы расчета спектра реализованы в комплексе GammaLab, который представляет собой виртуальную гамма-спектрометрическую лабораторию и позволяет проводить полный цикл моделирования спектрометрического эксперимента:

построение модели детектора, которая имеет достаточное для решаемой задачи соответствие между экспериментальными и расчетными данными;

моделирование калибровочных образцов и калибровку по ним виртуального устройства;

моделирование источников излучения требуемого радионуклидного состава и их измерение в нужной геометрии;

обработка спектров, идентификация радионуклидов и определение активности.

Модель детектора γ -излучения на основе сжатого ксенона.

Для приближенной модели детектора на основе сжатого ксенона эффективность регистрации по пику полного поглощения была рассчитана с использованием GammaLab и кода MCNP [6]. Расчеты по программе MCNP выполнены для двух вариантов – с учетом и без учета переноса электронов. Во втором варианте результаты расчета совпадают с полученными с использованием GammaLab, где перенос электронов не учитывается. Как следует из рис. 1, учет переноса электронов заметно сказывается на результатах расчета. Такое влияние объясняется низкой плотностью рабочего вещества ($\sim 0,3 \text{ г/см}^3$) и соответственно увеличением пробега электронов. Это в свою очередь приводит к вылету значительной доли электронов, образующихся в результате фотоэффекта, из чувствительного объема детектора. В результате происходит «перекачка» импульсов из пика полного поглощения в непрерывную часть спектра и уменьшение эффективности регистрации. Тем не менее учет переноса электронов не позволяет достичь полного согласия расчета с экспериментом. Объяснение этого расхождения может быть связано как с приближенностью модели детектора, так и влиянием на перенос вторичных электронов сильного электрического поля в области дрейфа, которое не учитывается в расчетах методом Монте-Карло.

Модельные спектры достаточно хорошо передают особенности функции отклика ксенонового детектора. К таким особенностям относится прежде всего сателлитный пик, обусловленный вылетом рентгеновских квантов ксенона из чувствительной области. Его достаточно большая площадь обусловлена также низкой плотностью рабочего вещества

по сравнению с плотностью традиционных NaI-детекторов. На рис. 2 в качестве примера показан реальный и модельный спектр ^{133}Ba . Некоторое отличие комптоновского распределения рассеянных γ -квантов обусловлено, по-видимому, тем, что не учитывается перенос электронов.

Особенности обработки спектров, измеренные детектором γ -излучения на основе сжатого ксенона.

Обработку спектров усложняют две основные проблемы,:

наличие пиков вылета рентгеновских квантов, что затрудняет аналитическое описание формы пика полного поглощения для детектора на основе сжатого ксенона;

недостаточно высокое по сравнению с особо чистым германиевым детектором разрешение, что приводит к наличию большого количества неразрешенных линий и как следствие, математически плохо обусловленной задаче. В случае сложного радионуклидного состава невозможно выделить отдельно стоящие информативные участки. В связи с этим при обработке какого-то участка спектра необходимо учитывать влияние соседних участков.

Подход, реализованный в программном комплексе SpectraLine [7], решает перечисленные проблемы с помощью схемы, оперирующей понятиями пика полного поглощения и эффективности регистрации.

В качестве информативной части спектра принимаются пики полного поглощения и соответствующие пики вылета рентгеновских квантов. Функция, описывающая информативную часть спектра γ -квантов данной энергии, определяется при калибровке спектрометра по форме линии из экспериментальных спектров, содержащих хорошо разрешенные линии в интересующем диапазоне энергии. Для калибровки по форме разработана процедура построения «пика-образа» – табличного представления формы аппаратной линии. Процедура заключается в выделении информативной области, вычитании фоновой подложки под пиком, последующем сглаживании экспериментальных

точек и сохранении сглаженного распределения в некоторых узлах. Фоновая подложка под пиком включает непрерывную комптоновскую составляющую от других пиков и комптоновскую ступеньку, связанную с рассеянием на малые углы вне чувствительной области детектора от пиков в информативном участке. Области фонового распределения аппроксимируют полиномом заданной степени, который вычитается из спектра по всей области построения пика-образа. Сглаживание полученного распределения осуществляется сплайнами. При построении модели пика с произвольной энергией проводится интерполяция ближайших калибровочных линий.

Рис. 3 иллюстрирует процедуру калибровки по форме линии. Затемненная область соответствует пика-образу. Он включает пик как полного поглощения, так и вылета рентгеновских квантов. В табл. 1 приведены результаты применения описанной процедуры при обработке спектров ^{137}Cs , ^{133}Ba и смеси ^{137}Cs , ^{60}Co , ^{22}Na , ^{133}Ba , измеренных детектором на основе сжатого ксенона. Эти данные демонстрируют соответствие измеренной активности каждого идентифицированного радионуклида ее паспортному значению.

Как уже отмечалось, учет соотношений интенсивностей улучшает обусловленность задачи. При традиционном подходе к обработке спектров параметры пика, в частности площадь, находят путем минимизации χ^2 -функционала. Можно ввести в качестве дополнительных параметров минимизации активность идентифицированных радионуклидов A и записать χ^2 -функционал для обрабатываемого участка спектра в виде

$$\chi^2 = \sum_i [Y_i - \sum_k S_k \psi(i, p_k) - F(i, f)]^2 \omega_i + \sum_l [S_l - A_m I_l^m \varepsilon(E_l)]^2 / [\Delta I_l^m \varepsilon(E_l) + \Delta \varepsilon(E_l) I_l^m]^2 A_m^2, \quad (1)$$

где Y_i - отсчет в i -м канале; $\psi(i, p_k)$ - модельная функция, описывающая k -й пик с вектором параметров p_k ; S_k - площадь k -го пика; $F(i, f)$ - функция, описывающая фоновую подложку; f - вектор коэффициентов; ω_i - весовые коэффициенты; l - индекс для суммирования по линиям идентифицированных нуклидов; A_m - активность m -го радионуклида; $I_l^m, \Delta I_l^m$ - интенсивность и погрешность интенсивности l -ой линии m -го радионуклида; $\varepsilon(E_l)$ - эффективность регистрации при энергии E_l .

В результате минимизации рассчитываются как параметры пиков, так и активность идентифицированных радионуклидов. При этом автоматически учитываются соотношения интенсивностей между линиями одного радионуклида.

Для нескольких информативных участков, в частности, для всего спектра в целом, можно представить χ^2 - функционал в виде суммы членов типа (1). В том случае, когда участки соприкасаются, накладывается условие непрерывности значений фоновой подложки под пиком и ее первой производной на границах участков. Это позволяет аппроксимировать сложную форму комптоновского распределения на больших участках спектра.

На рис. 4 приведены результаты аппроксимации участка спектра с большим числом γ -линий. Непрерывными линиями отображено комптоновское распределение под пиками и общая аппроксимирующая кривая, представляющая сумму пиков полного поглощения и комптоновского распределения.

Идентификация и определение активности образцов сложного радионуклидного состава.

Для проверки применения детектора γ -излучения на основе сжатого ксенона для идентификации и определения активности сложных образцов было проведено моделирование измерений реальных проб, отобранных в начале развития аварии на Чернобыльской АЭС. Такие измерения традиционно проводили с помощью особо чистых

германиевых спектрометров. Спектры моделировали как для ксенонового, так и особо чистого германиевого детектора. Обработку проводили с помощью программного комплекса SpectraLine (табл. 2, 3, рис. 5). Все радионуклиды идентифицированы, их активность в пределах погрешности в основном совпадает с паспортными характеристиками модельных образцов.

Определение изотопного состава плутония.

Высокое по сравнению с NaI-детекторами разрешение детектора на основе сжатого ксенона позволяет рассчитывать на определение с его помощью изотопного состава плутония. Одной из важных практических задач нераспространения ядерных материалов является выявление «оружейного» и «реакторного» плутония. Для исследования возможностей детекторов на основе сжатого ксенона были смоделированы образцы плутония с изотопным составом, соответствующим как оружейному, так и реакторному плутонию.

Спектр плутониевых образцов при наличии в них ^{241}Pu сильно зависит от времени с момента выделения. В результате распада в образце накапливаются ^{237}U и ^{241}Am , что усложняет определение изотопного состава плутония. В то же время по отношению активности этих радионуклидов к активности ^{241}Pu можно определить время выделения, что является одной из характеристик образца, позволяющих определить его происхождение. Для выявления влияния ^{237}U и ^{241}Am на определение изотопного состава, а также исследования возраста образца, моделировали спектры с разным временем выделения.

Методика измерения изотопного состава предполагает учет самопоглощения γ -излучения в материале образца, которое зависит от его массы, в связи с чем моделировали образцы массой 500 и 10 г (табл. 4). Результаты обработки показывают, что детектором на основе сжатого ксенона содержание ^{239}Pu достоверно определяется с погрешностью не больше нескольких процентов, что сравнимо с возможностями особо чистых германиевых

детекторов. Достаточно надежно определяется ^{241}Am , что позволяет с хорошей точностью узнать возраст образца.

Таким образом, с использованием программного комплекса GammaLab исследованы возможности применения детекторов на основе сжатого ксенона для решения сложных задач гамма-спектрометрического анализа. На базе построенной модели был проведен цикл модельных экспериментов, включающих как калибровочные измерения, так и измерения непосредственно образцов. Сравнение с экспериментальными спектрами показало, что модельные спектры достаточно хорошо передают особенности аппаратной функции детектора на основе сжатого ксенона. Полученные результаты показывают принципиальную возможность применения этого детектора с программой SpectraLine для количественного анализа образцов сложного радионуклидного состава, в частности, определения изотопного состава плутония.

Список литературы

1. **Берлизов А.Н., Даниленко В.Н., Ковальский Е.А.** и др. Программный комплекс для эмуляции аппаратурных гамма-спектров реальном времени. – В сб.: XIII ежегодный семинар "Спектрометрический анализ. Аппаратура и обработка данных на ПЭВМ", Обнинск, 20-24 ноября 2006 г., ГЦИПК, 2007, с. 123-134.
2. **Берлизов А.Н., Даниленко В.Н., Ковальский Е.А.** и др. Интегрированная среда для моделирования гамма-спектров. – В сб.: X Межд. сов. "Проблемы прикладной спектрометрии и радиометрии". Колонтаево, 8-11 октября 2007 г., с. 12.
3. **Dmitrenko V.V., Gratchev V.M., Ulin S.E.** High Pressure Xenon Gamma-Spectrometers with High Energy Resolution. – In: Nucl. Sci. Symp., 1996, Conference Record. v. 1, p. 393 – 397.
4. **Ulin S.E., Chernycheva I.V., Dmitrenko V.V.** Gamma-ray spectrometric equipment for detecting nuclear materials. – In: Proc. of SPIE, 1999, v. 3768, p. 271-279.
5. **Tickner J.R.**, Modelling Detector Responses to Neutrons Using MCNP. – In: Conf. "Advanced Monte Carlo for Radiation Physics, Particle Transport Simulation and Applications", Lisbon, October 23-26, 2000, p. 669-674.
6. MCNP – a General Monte Carlo N-Particle Transport Code, LA-12625-M, 1997.
7. **Даниленко В.Н., Ковальский Е.А., Скубо Ю.В.** и др. Программное обеспечение семейства «SpectraLine». Комплексный подход к решению задач спектрометрического анализа. - В сб.: X Международное совещание "Проблемы прикладной спектрометрии и радиометрии", Колонтаево, 8-11 октября 2007 г., с. 15.

Таблица 1. Паспортная и измеренная детектором на основе сжатого ксенона активность.

Источник	Паспортные данные		Измеренная активность	
	A, кБк	δ, %	A, кБк	δ, %
¹³⁷ Cs	113,5	3	113	3
⁶⁰ Co	99,66	3	99	12
²² Na	123,1	3	119	7
¹³³ Ba	117	3	119	6
Смесь изотопов:				
¹³⁷ Cs,	113,5	3	107	11
⁶⁰ Co,	99,66	3	105	7
²² Na,	123,1	3	124	9
¹³³ Ba	117	3	120	9

Таблица 2. Результаты обработки модельных спектров пробы из помещения, залитого водой с радиоактивными загрязнениями.

Изотоп	Исходные данные, $A, \text{кБк}$	Особо чистый германиевый детектор		Детектор на основе сжатого ксенона	
		$A, \text{кБк}$	$\delta, \%$	$A, \text{кБк}$	$\delta, \%$
^{134}Cs	11	10,98	2,2	10,4	8
^{137}Cs	34	33,2	2,6	31,7	6
^{95}Zr	7	7,03	1,9	6,3	18
^{95}Nb	9	8,64	3	8,7	20
^{103}Ru	10	9,3	4	10,1	25
^{106}Ru	10	10,07	1,9	10	50
^{144}Ce	28	28,5	6	28	15

Таблица 3. Результаты обработки модельных спектров радионуклидного состава выброса из аварийного блока Чернобыльской АЭС.

Изотоп	Исходные данные, А, Бк	Особо чистый германиевый детектор		Детектор на основе сжатого ксенона	
		А, Бк	δ, %	А, Бк	δ, %
¹³³ Xe	44753	46500	5	54000	17
¹³¹ I	7473	7550	2	7600	4
¹⁴⁰ Ba	3990	3970	2,4	3940	3
⁹⁵ Zr	4000	3970	4	3770	2,8
¹⁴⁴ Pr	2261	2380	4	2100	29
¹⁴¹ Ce	3000	3040	6	2830	9
¹⁰³ Ru	3000	2960	2,8	3060	4
⁹⁹ Mo	2968	2950	2,7	2790	5
¹⁴⁴ Ce	2500	2500	6	2530	9
¹⁰⁶ Ru	1600	1580	2,6	1690	7
¹³² Te	1486	1460	4	1440	11
²³⁹ Np	1000	1003	2,2	1150	9
¹³⁷ Cs	1000	980	5	970	4
¹³⁴ Cs	500	500	2,0	488	2,9
¹³² I	389	406	1,5	374	3
⁹⁹ Tc-M	286	296	8	300	10
¹⁴⁰ La	68,2	68,5	2,6	75	11
⁹⁵ Nb	3,27	3,4	9	<14	--

Таблица 4. Результаты обработки модельных спектров образцов плутония.

Образец	Возраст образца	Состав	Масса, %	Особо чистый германиевый детектор	Детектор на основе сжатого ксенона
оружейный	Масса 10 г				
	свеже-выделенный	²³⁸ Pu	0,01	0,0076±0,0012	<0,010
		²³⁹ Pu	93,17	93,2± 0,3	92,9± 1,4
		²⁴⁰ Pu	6,28	6,2± 0,3	6,6± 1,4
		²⁴¹ Pu	0,54	0,533± 0,02	0,47± 0,06
		²⁴¹ Am	0	< 1,9	<20
		²³⁷ U	0	< 9,4*10 ⁻⁵	<0,03
	1 год	²³⁸ Pu	0,01	0,0097± 0,0013	<0,010
		²³⁹ Pu	93,17	93,0± 0,3	93,6± 1,6
		²⁴⁰ Pu	6,28	6,5± 0,3	6,0± 1,6
		²⁴¹ Pu	0,514	0,508± 0,02	0,48± 0,06
		²⁴¹ Am	255	262± 13	280± 30
		²³⁷ U	16,04	16,1± 0,3	14,1± 1
	Масса 500 г				
	свеже-выделенный	²³⁸ Pu	0,01	0,0085± 0,0008	0,090± 0,024
		²³⁹ Pu	93,17	93,18± 0,28	94,0± 0,9
		²⁴⁰ Pu	6,28	6,29± 0,28	5,4± 0,9
		²⁴¹ Pu	0,54	0,521± 0,024	0,59± 0,12
		²⁴¹ Am	0	< 0,67	<15
		²³⁷ U	0	<5,7*10 ⁻⁵	<0,03
	1 год	²³⁸ Pu	0,01	0,0086± 0,0009	0,015± 0,004
		²³⁹ Pu	93,17	93,26± 0,28	93,1± 1
		²⁴⁰ Pu	6,28	6,24± 0,28	6,4± 1
		²⁴¹ Pu	0,514	0,493± 0,024	0,53± 0,14
²⁴¹ Am		255	259± 10	265± 20	
²³⁷ U		16,04	15,8± 0,2	15,6± 0,7	
реакторный	Масса 10 г				
	свеже-выделенный	²³⁸ Pu	1,07	1,06± 0,04	1,12± 0,05
		²³⁹ Pu	82,49	82,5± 0,5	81,6± 1,9
		²⁴⁰ Pu	13,75	13,8± 0,5	14,9± 1,9
		²⁴¹ Pu	2,69	2,65± 0,08	2,31± 0,16
		²⁴¹ Am	0	< 5,4	<30
		²³⁷ U	0	< 8,8*10 ⁻⁵	<0,03
	1 год	²³⁸ Pu	1,07	1,05± 0,04	1,08± 0,05
		²³⁹ Pu	82,49	82,7± 0,6	82,4± 2,2
		²⁴⁰ Pu	13,75	13,7± 0,6	14,4± 2,3
		²⁴¹ Pu	2,69	2,59± 0,08	2,17± 0,17
		²⁴¹ Am	1272	1340± 40	1360± 70
		²³⁷ U	79,9	80,4± 1	72± 5
	Масса 500 г				
	свеже-выделенный	²³⁸ Pu	1,07	1,03± 0,05	1,03± 0,04
		²³⁹ Pu	82,49	82,7± 0,5	82,0± 1,7
		²⁴⁰ Pu	13,75	13,7± 0,5	14,0± 1,7
		²⁴¹ Pu	2,69	2,55± 0,09	2,93± 0,22
		²⁴¹ Am	483,7	< 2,25	<30
		²³⁷ U	83,928	< 8,5*10 ⁻⁵	<0,03
	1 год	²³⁸ Pu	1,07	1,02± 0,05	1,04± 0,05
		²³⁹ Pu	82,49	82,9± 0,5	82,9± 1,7
		²⁴⁰ Pu	13,75	13,6± 0,5	13,3± 1,8
		²⁴¹ Pu	2,69	2,48± 0,09	2,69± 0,30
²⁴¹ Am		1272	1287± 40	1330± 70	
²³⁷ U		79,9	79,3± 1	79± 5	

Примечание. Для изотопов плутония приведены массы в %, для ²⁴¹Am – мкг/ г Pu, для ²³⁷U – нг/ г Pu.

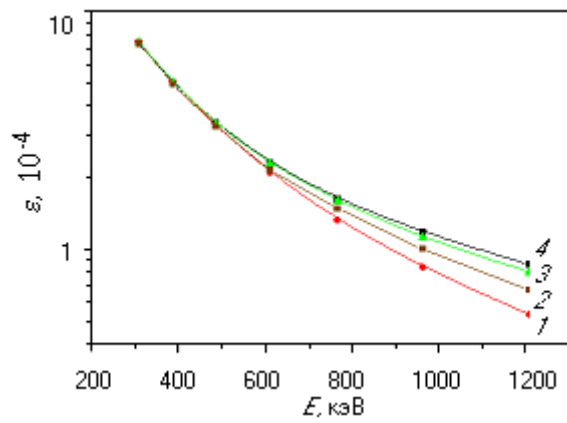


Рис.1. Эффективность регистрации, рассчитанная по экспериментальным данным (1) и по программам GammaLab (4) и MCNP с учетом (2) и без учета (3) переноса электронов.

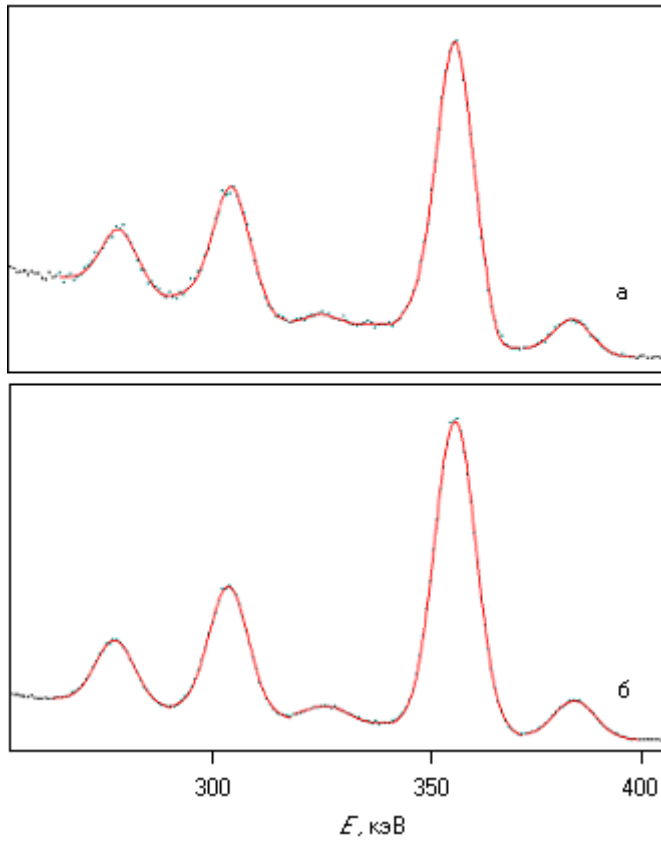


Рис. 2. Участок реального (а) и модельного (б) спектра ^{133}Ba , измеренного детектором на основе сжатого ксенона.

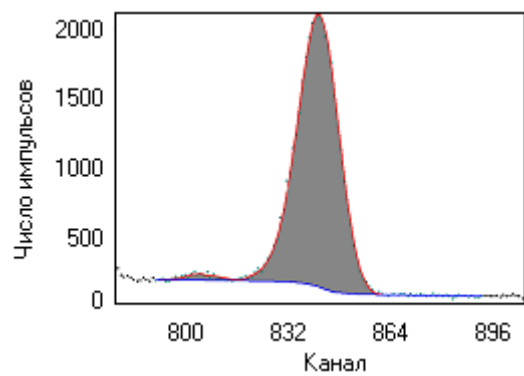


Рис. 3. Процедура калибровки по форме линии.

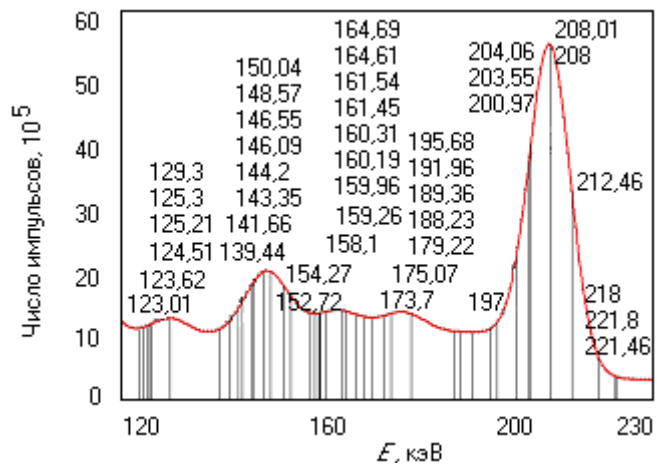


Рис. 4. Результаты аппроксимации участка спектра Pu-образца с большим числом γ -линий.

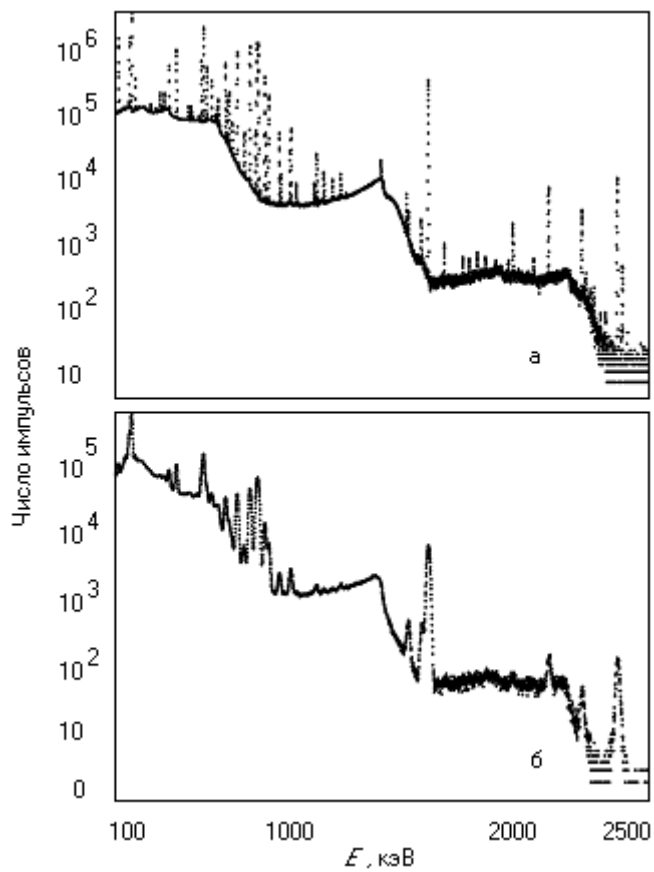


Рис. 5. Модельный спектр радионуклидного состава выброса из аварийного блока Чернобыльской АЭС, измеренный полупроводниковым (а) и ксеноновым (б) детектором.