Для цитирования: Аналитика и контроль. 2017. Т. 21, № 3. С. 197-207

УДК 621.039

DOI: 10.15826/analitika.2017.21.3.002

О возможностях повышения контрастности при измерениях объемной концентрации ¹³¹I сцинтилляционными γ-спектрометрами

М.П. Белоусов, *О.В. Игнатьев, Е.А. Купчинская, А.В. Купчинский, С.Г. Морозов, А.А. Пулин

Уральский федеральный университет имени первого Президента России Б.Н. Ельцина, Российская Федерация, 620002, Екатеринбург, ул. Мира,19

*Адрес для переписки: Игнатьев Олег Валентинович, E-mail: ignatyev47@gmail.com

Поступила в редакцию 25 апреля 2017 г., после исправлений – 13 июня 2017 г.

Основная проблема измерения объемной концентрации 131 I (γ -линия 364 кэВ) гамма-спектрометрами со сцинтилляционными детекторами низкого разрешения (NaI:TI, CsI:TI) обусловлена перекрытием с комптоновским краем (384 кэВ) от сопутствующего излучения 76 As. Проблема может быть в значительной степени устранена улучшением энергетического разрешения спектрометра, увеличением объема кристалла или использованием антикомптоновского спектрометра.

С применением моделирования методом Монте-Карло (пакет GEANT4) были исследованы два последних способа увеличения контрастности аппаратурных энергетических спектров. Выяснено, что 8-кратное увеличение объема сцинтиллятора улучшает отношение площади пика ¹³¹I к площади комптоновского континуума под ним от излучения ⁷⁶As лишь в 1.42 раза. Поэтому основное внимание было уделено сравнительным исследованиям конструкций антикомптоновских детекторов на основе кристаллов CsI:TI в детекторе-анализаторе и детекторе-протекторе. Предложены варианты конструкций антикомптоновских детекторов, пригодных для жестких условий применения на АЭС. В первой из них кристалл-протектор в виде диска с диаметром равным диаметру кристалла-анализатора, а во второй – в виде "стакана", надеваемого на кристалл-анализатор. Толщина кристаллов-протекторов в обоих случаях равна 10 мм. Ожидаемое улучшение контрастности по отношению к однокристальной конструкции может достигать трех и более раз.

Намечены направления дальнейшего совершенствования двухкристальных спектрометров, предназначенных для мониторирования содержания в воздухе радионуклида ¹³¹I. Наиболее перспективным представляется известный с 1960-х годов аппаратно-программный метод, использующий вычитание из спектра антисовпадений (антикомптоновский спектр) части спектра совпадений. Современные ядерная электроника и компьютеры делают возможным успешное применение этого метода в промышленных спектрометрических установках. Контрастность результирующих спектров может быть увеличена на порядок и более по сравнению с простыми спектрами антисовпадений.

Ключевые слова: энергетическое разрешение, пик полного поглощения, γ -линии, комптоновское рассеяние, антисовпадения, детектор-анализатор, детектор-протектор.

For citation: Analitika i kontrol' [Analytics and Control], 2017, vol. 21, no. 3, pp. 197-207

DOI: 10.15826/analitika.2017.21.3.002

Possibilities of improving contrast for the measurements of the ¹³¹I volume concentration by scintillation γ-spectrometers

Maxim P. Belousov, *Oleg V. Ignatyev, Eugenia A. Kupchinskaya, Anton V. Kupchinsky, Sergey G. Morozov, Aleksey A. Pulin

Ural Federal University named after the first President of Russia B.N. Yeltsin ul. Mira, 19, Ekaterinburg, 620002, Russian Federation

*Corresponding author Oleg V. Ignatyev, E-mail: ignatyev47@gmail.com

The main problem of measuring the ¹³¹I volume concentration (364-keV γ-line) with gamma spectrometers with low-resolution scintillation detectors (Nal:TI, CsI:TI) is due to the overlap with the Compton edge (384 keV) from the attendant radiation of ⁷⁶As. The problem can be largely eliminated by improving the energy resolution of the spectrometer, increasing the volume of the crystal, or using an anti-Compton spectrometer. Using the Monte Carlo simulation (GEANT4 package), the last two methods of increasing the contrast of instrumental energy spectra were investigated. It was found that an 8-fold increase in the scintillator volume improves the ratio of the ¹³¹I peak area to the area of the Compton continuum below it from the ⁷⁶As radiation only by 1.42 times. Therefore, the main attention was paid to the comparative studies of the constructions of anti-Compton detectors based on CsI:TI crystals in a detector-analyzer and a detector-protector. Several designs of anti-Compton detectors suitable for harsh application conditions at nuclear power plants were proposed. In the first of them, the protector crystal is in the form of a disk with a diameter equal to the diameter of the crystal analyzer, and in the second - in the form of a "glass" put on the crystal analyzer. The thickness of the protector crystals in both cases was 10 mm. The expected improvement in contrast with respect to the single-crystal design was up to 3 or more times. Modern nuclear electronics and computers make possible the successful application of this method in industrial spectrometric installations. The contrast of the resulting spectra could be increased by an order of magnitude or more in comparison with the simple anticoincidence spectra.

Key words: energy resolution, peak of full absorption, γ -lines, Compton scattering, anticoincidence, detector-analyzer, detector-protector.

ВВЕДЕНИЕ

В автоматизированных системах радиационного контроля атомных электростанций широко практикуются непрерывный и лабораторный мониторинги объемного содержания радионуклида ¹³¹I в воздухе рабочих помещений и вентиляционных систем. Чаще всего для этих целей применяют установки, имеющие в своей основе сцинтилляционные гамма-спектрометры с кристаллом NaI:TI. В отдельных случаях, когда возникают сомнения в достоверности показаний штатных радиометров, проводят контрольные измерения на спектрометрах с полупроводниковыми детекторами из особо чистого германия (HpGe), требующими охлаждения жидким азотом.

Для реакторов типа ВВЭР в нестационарных режимах работы характерно появление радионуклида 76 As с энергией $E_{..}$ = 559 кэВ. Как известно, содержание радионуклида пропорционально площади (или интенсивности) пика полного поглощения (Full Absorption Peak - FAP) соответствующей ему ү-линии в аппаратурном спектре. Проблема состоит в том, что основная линия гамма-излучения йода $(E_{1-131} = 364 \text{ кэВ})$ частично накладывается на комптоновский край (Compton Edge - CE) аппаратурного спектра 76 As (E_{CF} = 384 кэВ). В простейшем случае измерение упомянутой площади производят измерением числа отсчетов (или интенсивности) в заданном энергетическом окне (рис. 1, б). Естественно, что при наличии ⁷⁶As получаются завышенные результаты по содержанию 131 І. Достоверность результатов критически зависит от отношения истинной площади пика полного поглощения S_{n} йода к площади комптоновского континуума S под ним от мышьяка. Здесь и далее это отношение понимается как контрастность.

Лучшие результаты дает математическая обработка аппаратурного спектра, в ходе которой для

вычисления площади FAP из общей суперпозиции вычитаются внешний фон и комптоновский континуум от ⁷⁶As. К сожалению, даже при наличии в спектре лишь одной ү-линии, в общем случае нет единого рецепта по аппроксимации создаваемого ею комптоновского континуума [1]. Перекрытие FAP и СЕ еще более усложняют задачу. Упомянутая математическая процедура достаточно эффективна, если на конкретном спектрометре тщательно измерены стабильные во времени внешний фон и форма комптоновского континуума, а также при условии хорошей статистики измерений, так как относительные статистические флуктуации определений при числе отсчетов n пропорциональны $1/\sqrt{n}$. При этом следует помнить, что вычитание одного статистического распределения из другого приводит к увеличению неопределенности результата определения.

Понятно, что в условиях атомных станций, где уровень фона и его энергетический спектр в сильной степени зависят от режима работы реактора и многих других факторов, выполнение этих условий почти нереально. Целесообразно рассмотреть конструктивные способы увеличения контрастности аппаратурных сцинтилляционных спектров — чем выше отношение пик/фон, тем ниже относительный вклад погрешности аппроксимации фона в вычисления площади пика ¹³¹І. Таких способов три: 1) улучшение энергетического разрешения;

- 2) увеличение отношения пик/комптон для γ -квантов с $E_{\text{As-76}}$ = 559 кэВ, за счет увеличения размеров сцинтиллятора [2];
- 3) применение защитного сцинтиллятора (сцинтиллятор-протектор) на антисовпадениях со сцинтиллятором-анализатором [3].

Увеличение контрастности результатов измерений йода-131 за счет улучшения энергетического разрешения спектрометра может быть достигнуто применением современных сцинтилляторов

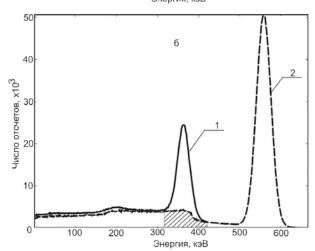


Рис. 1. Спектры ¹³¹I + ⁷⁶As, полученные с кристаллами Csl:Tl: а — измеренный на реакторе Института радиационных материалов (пос. Заречный), содержание йода в угольном фильтре вдвое выше содержания мышьяка; б - смоделированный в GEANT4 для равных концентраций и точечного источника; 1 — FAP ¹³¹I; 2 — FAP ⁷⁶As; заштрихованная область — комптоновский континуум от мышьяка

Fig. 1. ¹³¹I + ⁷⁶As spectra obtained with CsI:TI-crystals: a – measured at the Institute of Radiation Materials (Zarechnyi), the content of iodine in the coal filter is twice that of the arsenic; b – modeled in GEANT4 for equal concentrations and a point source; 1 – FAP of ¹³¹I; 2 – FAP of ⁷⁶As; The shaded area - the Compton continuum caused by arsenic

LaBr₃:Се либо CeBr₃ вместо традиционного NaI:TI. Относительные энергетические разрешения η_{662} по линии 137 Cs с E_{γ} = 662 кэВ для LaBr₃:Се и CeBr₃ составляют менее 3 % и 4 % соответственно, против \approx 7 % с NaI:TI [4]. Такая замена в первом приближении может улучшить контрастность, т.е. отношение S_{p}/S_{c} в \sim 1.75-2.3 раза, а минимально измеряемую активность уменьшить на \sim 30-50 %. К сожалению, отсутствие производства в России упомянутых сцинтилляторов и аномально высокая их стоимость в РФ (\approx 10000.0 \$ за небольшой кристалл размером \varnothing 38×38 мм) исключают их промышленное применение.

Поэтому мы направили свои усилия на изучение двух других возможностей повышения качества сцинтилляционных радиометров ¹³¹І. Нами была поставлена задача ценой относительно небольших затрат получить сравнительные характеристики дорогостоящих аппаратных реализаций различных методов повышения контрастности спектров для последующей практической разработки улучшенной радиометрической установки. Исследования были проведены путем моделирования отклика различных детекторов по методу Монте-Карло в пакете GEANT4 (GEometry ANd Tracking) [5], идеально приспособленном для моделирования прохождения у-квантов и заряженных частиц через вещество в произвольной «геометрии».

ИССЛЕДОВАТЕЛЬСКАЯ ЧАСТЬ

Для оценочных моделирований мы использовали гипотетический точечный источник, содержащий ¹³¹I и ⁷⁶As в равных концентрациях (отношение активностей $A_{\text{I-131}}/A_{\text{As-76}}$ составляет приблизительно 1/4). При сравнении вариантов детекторов, претендующих на практическое применение, источником излучения служил угольный фильтр, применяемый на АЭС (цилиндр из углерода плотностью 0.25 г/см^3 , $\emptyset 45 \times 15 \text{ мм}$). В случайных точках этого цилиндра генерировались гамма-кванты с энергиями 364 или 559 кэВ, летящие в произвольных направлениях. Фильтр располагали на поверхности детектора, отношение активностей йода и мышьяка были выбраны $A_{1-131}/A_{As-76} \approx 1:30$ (в соответствии с данными, полученными от службы радиационной безопасности Калининской АЭС).

Исходный кристалл CsI:Tl имел форму куба¹, 5 граней которого окружали тонким слоем диффузного отражателя (1 мм MgO), а шестая была покрыта чувствительной поверхностью фотосенсора. Выбор в качестве рабочего вещества детектора не традиционного Nal:Tl, а Csl:Tl, обусловлен приблизительно на 10 % большей эффективностью регистрации последнего для у-квантов с энергией $E_{\rm m}$ = 559 кэВ (для стандартных кристаллов Ø63×63 мм), а также рядом других преимуществ [4]. Ширины пиков по линиям излучения 364 и 559 кэВ рассчитывали исходя из типичного значения энергетического разрешения $\eta_{\rm se2}$ на линии 662 кэВ равного 7 % для ординарного у-спектрометра со сцинтиллятором CsI:TI и вакуумным фотоумножителем (**PMT**) и постулирования того, что вклад в него дают только собственное разрешение $\eta_{\mbox{\tiny int}}$ кристалла и статистика преобразования энергии ү-квантов в число первичных электронов в фотосенсоре $\eta_{\rm sc}$

Выбор такой необычной формы сцинтиллятора обусловлен некоторым упрощением моделирования, а также наглядностью сравнения с детектором сотовой конструкции, о котором речь пойдет ниже.

Смоделированное влияние размеров сцинтиллятора на контрастность измерений: источник излучения угольный фильтр \emptyset 45×15 мм; $A_{\text{\tiny L-131}}/A_{\text{\tiny As-76}}$ = 1/30

Table 1 Simulated influence of scintillator sizes on the contrast of measurements: the radiation source is carbon filter \emptyset 45×15 mm; $A_{1-131}/A_{As-76} = 1/30$

№ п/п	Размеры детекто-	ззмеры детекто-	c	S /S	Контрастность относительно ба-	
IN≌ II/II	ра, мм	S _p	S _c	S _p /S _c	зового детектора	
1	40×40×40	2.40·10 ⁶	5.40·10 ⁶	0.44	0.80	
2	60×60×60	3.95·10 ⁶	7.15·10 ⁶	0.55	1.00	
3	80×80×80	6.66·10 ⁶	10.59·10 ⁶	0.63	1.15	

Увеличение контрастности за счет увеличения объема детектора

Были смоделированы измерения с кубическими сцинтилляторами трех размеров: $40\times40\times40$, $60\times60\times60$ и $80\times80\times80$ мм. В этих модельных экспериментах источником излучения был упомянутый выше угольный фильтр. Определяли площади пика полного поглощения $S_{\rm p}$ у-квантов, излучаемых 131 I, площади комптоновского континуума $S_{\rm c}$ под пиком $E_{\rm l-131}$ = 364 кэВ (325-400 кэВ) от комптоновских у-квантов, возникших в сцинтилляторе при регистрации у-линии $E_{\rm As-76}$ = 559 кэВ, а также отношения упомянутых площадей. Результаты сведены в табл. 1.

Можно видеть, что зависимость S_p/S_c от размеров кристалла достаточно слабая. Так увеличение объема кристалла в 8 раз приводит к улучшению контрастности лишь в 1.42 раза. При этом эффективность регистрации в пике полного погло-

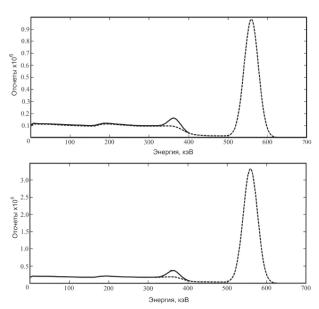


Рис. 2. Модельные спектры 131 I и 76 As, полученные с кристаллами CsI:TI $40\times40\times40$ мм (верхний) и $80\times80\times80$ мм (нижний). Источник излучения – угольный фильтр ($0.25\,\text{г/cm}^3$, $\oslash 45\times15\,\text{мм}$); $A_{\text{I-131}}/A_{\text{As-76}}=1:30$

Fig. 2. Model spectra of 131 l and 76 As obtained with Csl:Tl crystals $40\times40\times40$ mm (upper) and $80\times80\times80$ mm (lower). The radiation source is carbon filter (0.25 g / cm3, $\varnothing45\times15$ mm); $A_{1-131}/A_{As-76}=1:30$

щения возрастает почти в 3 раза (2.78). Отсутствие качественных изменений формы спектра иллюстрирует и рис. 2. При этом стоимость детектора, с учетом стоимости фотосенсора с большой площадью чувствительной поверхности (матрица кремниевых фотоумножителей либо РМТ), возрастает в несколько десятков раз. Это малоэффективный и весьма затратный путь.

Использование схемы антисовпадений

Существует большое число конструкций детекторов с защитным сцинтиллятором, регистрирующим вылеты комптоновски рассеянных в кристалле-анализаторе γ -квантов [6, 7, 8]. Принцип действия антикомптоновских детекторов состоит в том, что первичные γ -кванты (в данном случае с энергиями $E_{\text{I-131}}$ = 364 кэВ и $E_{\text{As-76}}$ = 559 кэВ) взаимодействуют с кристаллом-анализатором по одному из механизмов: фотопоглощение либо комптоновское рассеяние. В случае одновременного срабатывания электронных каналов кристалла-анализатора и кристалла-протектора (комптоновское рассеяние) запрещается кодирование и запись кода амплитуды сигнала с детектора-анализатора. Этим подавляется комптоновский континуум в аппаратурном спектре.

«Защитным» кристаллом, очевидно, будут регистрироваться комптоновские γ -кванты ⁷⁶As с энергиями в соответствии с известной формулой (см., например, [2]):

$$E' = E / [1 + E(1 - \cos \Theta)/m_0 c^2],$$
 (1)

где E' – энергия комптоновски рассеянного γ -кванта; E - энергия первичного γ -кванта; Θ – угол разлета первичного и рассеянного квантов; $m_0 c^2$ = 511 кэВ – энергия покоя электрона.

Согласно (1) энергии комптоновских γ -квантов лежат в пределах от 559 кэВ (Θ = 0°) до 175 кэВ (Θ = 180°). Соответственно энергии электронов отдачи, вызывающих сцинтилляции, простираются от 0 (Θ = 0°) до 384 кэВ (Θ = 180°).

Значение комптоновского края $E_{\rm CE}$ в аппаратурном спектре дается формулой (2), полученной как разность энергий первичного γ -кванта и комптоновского, рассеянного на угол Θ = 180°:

$$E_{CE} = 2E^2 / (m_0 c^2 + 2E)$$
. (2)

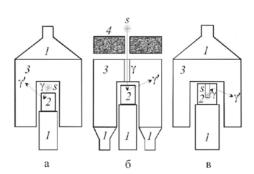


Рис. 3. Классические конструкции детекторов с защитным сцинтиллятором на антисовпадениях: а - источник внутри колодца защитного сцинтиллятора; б - источник вне защитного сцинтиллятора; в - источник внутри колодца кристалла-анализатора; 1 – фотоумножители; 2 – кристалл-анализатор; 3 – кристалл-протектор; 4 – свинцовый коллиматор; S – источник излучения

Fig. 3. Classical designs of detectors with a protective scintillator on anti-coincidence: a – source inside the well of the protective scintillator; b – source outside the protective scintillator; c – source inside the well of the crystal analyzer; 1 – photomultipliers; 2 – crystal-analyzer; 3 – crystal-protector; 4 – lead collimator; S – radiation source

Классические варианты антикомптоновских детекторов приведены на рис. 3 [3]. Следует отметить, что все три варианта, помимо прямого назначения, обеспечивают снижение счета от внешнего фона и космического излучения.

Схема «а» простейшая из них. Главные недостатки – ограничения, накладываемые конструкцией на размеры и максимальную активность источника (из-за большой паразитной загрузки электронного канала детектора-протектора). Конструкция «б» снимает проблемы предыдущей, но характеризуется низкой чувствительностью из-за коллимации источника. Детектор «в» обладает самой высокой чувствительностью благодаря почти «4 π -геометрии», в нем сведена к минимуму паразитная засветка защитного сцинтиллятора. Неудобство конструкции в том, что размеры источника излучения ограничены размерами колодца кристалла-анализатора.

Условия применения антикомптоновского спектрометра в условиях АЭС, особенно для непрерывного мониторирования содержания в воздухе ¹³¹I, когда фильтр прокачивается непрерывно, требуют создания относительно дешевого, механически надежного, но эффективного детектора. Наличие сильной вибрации и необходимость свободного доступа к месту расположения фильтра, накопившего (или накапливающего при непрерывном мониторинге) определяемый нуклид, исключают использование конструкций «а» и «в», которые требуют сборки-разборки для каждого измерения.

За основу антикомптоновского детектора была принят вариант «б». Отличие состоит в том, что исключены коллиматор и отверстие в защитном сцинтилляторе под источником излучения. Особенность

этой «геометрии» состоит в том, что первичные γ -кванты от 131 I с энергией 364 кэВ должны с высокой вероятностью пролетать без взаимодействия через защитный сцинтиллятор. В тоже время комптоновски рассеянные в кристалле-анализаторе γ -кванты от 76 As должны эффективно взаимодействовать с защитным сцинтиллятором. Эти противоречивые требования заставляют тщательно выбирать материал и толщину сцинтиллятора-протектора. Следующий этап моделирования имел своей задачей определиться с параметрами защитного сцинтиллятора.

Определение типа и толщины сцинтилляторапротектора

В качестве кандидатов на роль защитных сцинтилляторов были выбраны те, которым при практической реализации детектора будет несложно придать требуемую форму, например цилиндрическую. Это пластиковый сцинтиллятор типа BC-404 [9] и неорганический CsI:TI. Конструкция антикомптоновского детектора приведена на рис. 4. В ней куб со стороной 60 мм кристалла-анализатора накрыт "стаканом" прямоугольного сечения из сцинтиллятора-протектора. Толщины стенок и дна защитного сцинтиллятора были одинаковыми и варьировалась. Точечный источник излучений ¹³¹I и ⁷⁶ As располагался снаружи "стакана" по центру дна. На этом этапе не учитывалось влияние диффузного отражателя (порошок MgO). Результаты этого этапа исследований содержатся в табл. 2.

Ряд выводов следует из приведенных данных: 1. Пластиковый сцинтиллятор в решаемой задаче не годится на роль защитного из-за слабого увеличения контрастности с ним даже при толщинах, соизмеримых с размерами кристалла-анализатора. Он недостаточно эффективно регистрирует комптоновски рассеянные и вылетевшие из кристалла-анализатора γ -кванты (E_{γ} = 175 ÷ 559 кэВ), а также сам является источником комптоновского излучения при взаимодействии с первичными γ -квантами (E_{γ} = 559 кэВ). Последнее может создавать чрезмер-

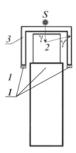


Рис. 4. Выбранная конструкция детектора с защитным сцинтиллятором на антисовпадениях: 1 – фотоумножители (вакуумный и твердотельные); 2 – кристалл-анализатор; 3 – кристалл-протектор; S – источник излучения

Fig. 4. Selected design of the detector with a protective scintillator at anti-coincidence: 1 – photomultipliers (vacuum and solid-state); 2 – crystal analyzer; 3 – crystal protector; S – radiation source

Таблица 2

№ 3.

Результаты моделирования влияния материала и толщины сцинтиллятора-протектора на контрастность: точечный источник излучения, $A_{\text{\tiny L-131}}/A_{\text{\tiny As-76}}=1:4$; кристалл-анализатор – «стакан» Csl:Tl $60\times60\times60$ мм (без диффузного светоотражателя)

Table 2

Results of modeling of the influence of the material and the thickness of the scintillator-protector on the contrast: point source of radiation, $A_{\text{I-13}}/A_{\text{As-76}} = 1:4$; crystal analyzer – "glass" CsI: TI 60×60×60 mm (without diffuse reflector)

Материал	Толщи-	Умень-	Умень-	Увеличе-
"защитного"	на сцин-	шение	шение	ние
сцинтилля-	тиллято-	Sp	S _c	S _p /S _c
тора	ра-протек-			,
	тора, мм			
	0,0	1.0	1.0	1.0
Пластик	20	1.2	1.6	1.3
	30	1.3	2.0	1.5
BC-404	40	1.5	2.6	1.7
	50	1.6	3.3	2.1
	0,0	1.0	1.0	1.0
	2	1.30	1.88	1.44
	4	1.68	3.14	1.87
Csl:Tl	6	2.11	4.94	2.35
CSI.II	8	2.62	7.64	2.91
	10	3.23	10.09	3.11
	12	4.02	13.38	3.33
	15	5.30	21.12	3.98

ную паразитную статистическую загрузку в электронном канале детектора-протектора.

2. Для практических целей вполне может быть применен сцинтиллятор CsI:Tl. Оптимальной его толщиной следует считать 10 мм. При больших толщинах неоправданно увеличивается время экспозиции изза ослабления им излучения 131 І. Подтверждением тому служит тот факт, что спектр на рис. 1а набирался (после суточной прокачки воздуха через фильтр) в течение 45 минут при A_{I-131} = 216 Бк и A_{As-76} = 431 Бк. 3. В данном эксперименте моделировались идеальные условия для улучшения соотношения FAP и комптоновского края. В реальных условиях соотношение S_{α}/S_{α} может быть хуже. Так при окружении кристалла-анализатора тонким слоем (1 мм) диффузного отражателя света (MgO) заметно падает отношение S₂/S₂. Причина тому – высокое сечение взаимодействия первичного излучения ⁷⁶As с окисью магния по комптоновскому механизму.

Схематичный анализ влияния конструкции кристалла-анализатора на свойства антикомптоновского детектора

В этих исследованиях сравнивали в идентичных условиях два детектора, в которых кристалланализатор, в первом случае, либо его составные элементы, во втором случае, были окружены тонким слоем диффузного отражателя.

- 1. Исходный кристалл-анализатор $60\times60\times60$ мм разделен на 100 оптически изолированных параллелепипедов (сотовая конструкция) с индивидуальными фотосенсорами. Размер одного элемента $6\times6\times60$ мм. Пять поверхностей каждого из элементов покрыты отражателем MgO в виде слоя порошка толщиной 1 мм [10], а шестая (тыльная), находится в оптическом контакте с фотосенсором. Вся сборка из 100 кристаллов-анализаторов помещена в «стакан» из сцинтиллятора-протектора CsI:TI (толщина стенок 10 мм), как на рис. 4. Фронтальные поверхности параллелепипедов 6×6 мм «смотрят» в дно «стакана». Фотосенсоры всех 101 кристалла включены на антисовпадения.
- 2. Исходный кристалл-анализатор помещен в «стакан» из кристалла-протектора Csl:Tl с толщиной стенок и дна 10 мм (рис. 4). Фотосенсоры обоих кристаллов включены на антисовпадения.

Полученные численные характеристики помещены в табл. 3, а соответствующие аппаратурные спектры приведены на рис. 5.

Оба варианта конструкции детектора на антисовпадениях упрощают форму комптоновского континуума под пиком ¹³¹I (см. спектр на рис. 1), что

Таблица 3

Результаты моделирования влияния конструкции детектора на контрастность спектров: точечный источник излучения, $A_{\text{I-13}}/A_{\text{As-76}}=1:4$

Table 3

Results of modeling of the influence of the detector design on the contrast of spectra: point source of radiation, $A_{1-131}/A_{A_{8-76}} = 1:4$

					Улуч-
Nº	Конструкция де-	Sp	S _c	S _p /S _c	ше-
п/п	тектора		o _c		ние
					S_p/S_c
	Куб CsI:TI (сторона				
1	60 мм), окружен-	4.65·10 ⁶	0.87·10 ⁶	5.34	1.0
'	ный слоем MgO	4.05 10			
	(1 мм)				
	Куб из 100 оптиче-				
	ски изолирован-		0.45·10 ⁶	5.41	1.02
	ных окисью магния				
	(1 мм) CsI:TI-				
2	элементов 6×6×60	2.45·10 ⁶			
	мм, помещенный в				
	«стакан» из CsI:TI				
	с толщиной стенок				
	10 мм				
	Куб CsI:ТІ (сторо-				
	на 60мм), окружен-		0.14·10 ⁶	17.62	3.31
3	ный слоем MgO (1				
	мм), помещенный	2.49·10 ⁶			
	в «стакан» из Csl:Tl				
	с толщиной стенок				
	10 мм				

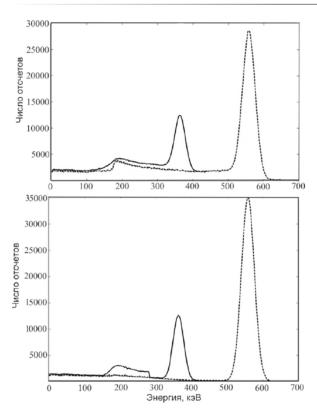


Рис. 5. Смоделированные спектры 131 I и 76 As, полученные с двумя антикомптоновскими детекторами с кристаллом-протектором из CsI:Tl толщиной 10 мм: сотовая конструкция кристалла-анализатора из 100 элементов $6\times6\times60$ мм (верхний) и кристалл-анализатор — моноблок $60\times60\times60$ мм (нижний). Точечный источник излучения; $A_{1-131}/A_{As-76}=1:4$. Пунктиром обозначен спектр 76 As, сплошной линией — суммарный спектр

Fig. 5. Simulated spectra of 131 I and 76 As obtained with two detectors with anti-Compton-crystal protector of 10 mm Csl:Tl thickness: the honeycomb structure of the crystal-analyzer 100 elements $6\times6\times60$ mm (upper) and the crystal-analyzer – monoblock $60\times60\times60$ mm (lower). Point source of radiation; $A_{\text{l-131}}/A_{\text{As-76}}=1:4$. The dotted line denotes the spectrum of 76 As, the solid line represents the total spectrum

облегчает вычитание комптоновского подслоя. Следует отметить, что эффективность регистрации детектора с «сотовым» кристаллом-анализатором оказалась незначительно меньшей, чем с «монолитным» (ср. графы 2 и 3 в табл. 3) потому, что излучение направлено в торцы длинных параллелепипедов, а не в боковые их грани.

Сложный многоэлементный детектор, предназначенный для улучшения энергетического разрешения за счет регистрации лишь однократных актов фотопоглощения γ -квантов², вопреки ожиданиям,

уступает более простой конструкции в части подавления комптоновского континуума. Причиной этого является высокая относительная толщина слоя порошка MgO, являющегося «генератором» комптоновского излучения. Проведенные ранее экспериментальные работы показали, что для обеспечения эффективного сбора света сцинтиллятора толщина слоя спрессованного порошка MgO не может быть менее 1 мм. Замена оксида магния на тонкую (5-10 мкм) алюминиевую фольгу приводит к ухудшению светосбора и, соответственно, к падению разрешающей способности спектрометра. Коэффициент диффузного отражения для MgO составляет свыше 99 %, а для алюминиевой фольги – около 75 %.

Полученные результаты носят сравнительный характер и не могут быть использованы для оценки свойств реальных антикомптоновских детекторов из-за их сильной зависимости от размеров источника излучений.

Поиск оптимальной конструкции детектора

В этим разделе рассматриваются результаты моделирования антикомптоновских детекторов, чьи конструкции максимально приближены к промышленно реализуемым. В качестве реперной конструкции выбрана показанная на рис. 4, чьи характеристики при облучении точечным источником помещены в табл. 3 (третья конфигурация). Результаты, получаемые с точечным источником, оказываются значительно лучшими, чем достижимые в реальных условиях, когда размеры источника излучения (угольный фильтр Ø45×15 мм) соизмеримы с размерами детектора. Так, для части у-квантов 131 І, возникших на периферии фильтра, возрастает эффективная толщина кристалла-протектора, что приводит к большему относительному уменьшению площади FAP E_{ij} = 364 кэВ. Для части γ -квантов обоих источников, рожденных на периферии фильтра,

Таблица 4

Влияние геометрии источника на характеристики антикомптоновского детектора (сравнение с однокристальным детектором): кристалл-анализатор – куб Csl:Tl с отражателем (сторона 60 мм); кристалл-протектор – «стакан» Csl:Tl (толщины стенок и дна 10 мм)

Table 4

Influence of the source geometry on the characteristics of the anti-Compton detector (in comparison with single-crystal detector): crystal-analyzer – Csl:Tl cube with a reflector (60 mm side); crystal-protector - «glass» Csl: Tl (wall thickness and bottom thickness are 10 mm each)

Источник из- лучения	Снижение S _p FAP ¹³¹ I за- щитным сцин- тиллятором	Снижение S _c под FAP	Возраста- ние S _p /S _c
Точечный	1.87	6.17	3.3
Угольный			
фильтр	3.22	9.58	3.0
Ø45×15 мм			

² На спектре, полученном с многоэлементным детектором, не отражено улучшение энергетического разрешения, поскольку в данном моделировании не учитывалось влияние зависимости световыхода CsI:TI от энергии вторичных электронов.

Таблица 5

Влияние конфигурации детектора-протектора на характеристики антикомптоновского детектора: кристалл-анализатор — куб со стороной 60 мм; источник излучения — угольный фильтр; $A_{1.131}/A_{4.8-76}$ = 1:30

Table 5

Influence of the configuration of the detector-protector on the characteristics of the anti-Compton detector: crystal analyzer-cube with a side of 60 mm; source of radiation – carbon filter; $A_{1-13}/A_{As-76}=1:30$

	1	_			
Nº	Детектор-про- тектор	Сни-	Сни-		Возрас-
п/п		жение	жение	S_{ρ}/S_{c}	тание
11/11		S_{p}	S_c	·	S_{p}/S_{c}
1	нет	1	1	0.55	1.0
2	Пластина из				
	CsI:TI толщи-	3.22	6.28	1.07	1.95
	ной 10 мм				
3	«Стакан» из				
	CsI:Tl с тол-	3.22	9.58	1.63	2.97
	щиной стенок	3.22			
	10 мм				

эффективный объем кристалла-анализатора оказывается также уменьшенным, а это уменьшает площадь FAP ¹³¹I и увеличивает вероятность комптоновских рассеяний. Данные табл. 4 для детектора в виде куба CsI:TI (сторона 60 мм), окруженного слоем MgO (1 мм), помещенного в «стакан» из CsI:TI с толщиной стенок 10 мм (рис. 4), в сравнении с тем же детектором без защитного сцинтиллятора иллюстрируют упомянутые различия.

Возникает вопрос: «а можно ли упростить конструкцию и, следовательно, стоимость детектора без заметной потери в контрастности?». Очевидно, что самым простым решением было бы обрезать стенки «стакана» сцинтиллятора-протектора, оставив только его днище. Результаты моделирования содержатся в табл. 5.

Результаты, полученные для детектора со сцинтиллятором-протектором в виде пластины, закономерны. На рис. 6 [2] показано угловое распределение комптоновских квантов, описываемое формулой Клейна-Нишины. Понятно, что при $E_{\rm As-76}$ = 559 кэВ защитным сцинтиллятором будет поглощаться меньшая часть комптоновских квантов.

Несмотря на слабое увеличение контрастности детектором с пластиной, в отдельных случаях такая конструкция имеет свои достоинства. Вопервых, благодаря предельной простоте стоимость антикомптоновского детектора незначительно превысит стоимость однокристального. Во-вторых, комптоновский континуум под пиком ¹³¹I становится практически линейным (рис. 7), а это увеличивает точность вычитания его при математической обработке аппаратурного спектра.

Рассмотренные выше конструкции антикомптоновских детекторов имеют один существенный

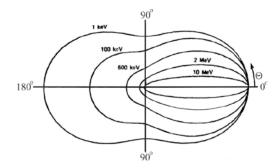


Рис. 6. Полярная диаграмма числа γ-квантов, комптоновски рассеянных в единичный телесный угол при угле рассеяния Θ (первичные кванты налетают слева). На диаграмме указаны энергии первичных квантов

Fig. 6. Polar diagram of the number of γ -quanta Compton scattered into a unit solid angle at the scattering angle Θ (the primary quanta are incident on the left). The energies of the primary quanta are shown on the diagram

недостаток. Кристалл-анализатор, выполненный в виде куба, крайне нетехнологичен.

Оптимальной формой сцинтилляционных кристаллов с точки зрения выращивания, минимизации механической обработки и светосбора является цилиндр. Стандартным размером, максимально близким к рассмотренным, является \emptyset 63.5×63.5 мм. Учитывая сказанное, было решено исследовать свойства трех конфигураций: однокристальный детектор; детектор антисовпадений с кристаллом-протектором в виде Csl:Tl-диска \emptyset 63.5×10.0 мм и с кристаллом-протектором в виде «стакана» с толщинами стенок и дна по 10 мм. Полученные результаты сведены в табл. 6, а соответствующие спектры отражены на рис. 8. Стоит сразу отметить, что, согласно результатам моделирования, эффективность регистрации в пике полного поглощения од-

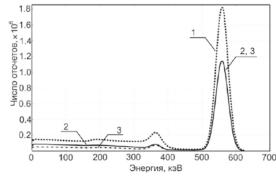


Рис. 7. Влияние конфигурации детектора-протектора на вид смоделированных спектров ¹³¹ I и ⁷⁶As: 1 – без защитного кристалла; 2 – пластина из Csl:Tl; 3 – «стакан» из Csl:Tl. Источник излучения – угольный фильтр; $A_{1-13}/A_{A_8-76}=1:30$

Fig. 7. Influence of the configuration of the detector-protector on the form of the simulated spectra of ¹³¹I and ⁷⁶As: 1 – without protective crystal; 2 – plate of CsI:TI; 3 – "glass" of CsI:TI. Source of radiation – carbon filter; $A_{1-131}/A_{As-76} = 1:30$

Таблица 6

Результаты моделирования характеристик антикомптоновских детекторов с цилиндрическим кристаллом-анализатором: источник излучения - угольный фильтр; $A_{\text{I-131}}/A_{\text{As-76}} = 1:30$

Table 6

The results of modeling of the characteristics of anti-Compton detectors with cylindrical crystal-analyzer: radiation source – carbon filter; $A_{I-131}/A_{As-76} = 1:30$

Nº	Детек-	Сни-	Сни-		Возрас-
	тор-протек-	жение	жение	S _p /S _c	тание
п/п	тор	S_{ρ}	S _c	,	S_{ρ}/S_{c}
1	нет	1	1	0.49	1.0
	Диск из CsI:TI				
2	Ø63.5 × 10.0	3.25	5.47	0.83	1.69
	мм				
	«Стакан» из				
3	CsI:TI с тол-	3.25	9.41	1.43	2.92
	щиной сте-	3.25			
	нок 10 мм				

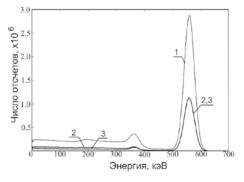


Рис. 8. Влияние конфигурации детектора-протектора на вид спектров ¹³¹I и ⁷⁶As: 1 - цилиндр без защитного кристалла; 2 - пластина из CsI:TI; 3 -«стакан» из Csl:Tl. Источник излучения - угольный фильтр; $A_{1-131}/A_{As-76} = 1:30$

Fig. 8. Influence of the detector-protector configuration on the form of the spectra of ¹³¹I and ⁷⁶As: 1 - cylinder without protective crystal; 2 - plate of CsI:TI; 3 -"glass" of CsI:TI. Source of radiation - carbon filter; $A_{\text{I-131}}/A_{\text{As-76}} = 1:30$

нокристального детектора-цилиндра при этих размерах значительно ниже, чем для детектора-куба. Это не удивительно, поскольку площадь рабочей поверхности куба на 14 % больше, чем у цилиндра, а объем куба больше на 27 %. Что касается улучшения контрастности за счет антикомптоновской логики работы, то тенденция аналогична наблюдаемой с кубическим кристаллом-анализатором (см. табл. 5). Вид аппаратурных спектров (рис. 8) близок к приведенным на рис. 7.

ВЫВОДЫ

Путем моделирования мы показали, что для корректного измерения объемной активности в воздухе радионуклида 131 в присутствии высокоактивного радионуклида ⁷⁶As необходимо применять спектрометры на антисовпадениях. Полученные результаты по повышению контрастности спектров заметно лучше, чем в однокристальном варианте с детектором больших размеров (ср. данные табл. 1 и 5, 6). Тем не менее, даже трехкратное увеличение контрастности может быть недостаточным при применении рассмотренных детекторов на таких ответственных объектах как АЭС.

Полученные результаты позволяют уже сейчас приступать к практической разработке специализированного спектрометра для промышленной радиометрии 131 І. Совершенно очевидно, что это будет спектрометр на антисовпадениях.

Существует несколько направлений дальнейшего увеличения контрастности спектров антисовпадений. Подлежат исследованию следующие. 1. В самой дешевой промышленно пригодной конструкции «цилиндрический кристалл-анализатор + дисковый кристалл-протектор» необходимо исследовать зависимость контрастности от диаметра защитного сцинтиллятора. Возможен выигрыш за счет регистрации большего числа рассеянных в кристалле-анализаторе γ-квантов ⁷⁶As с увеличением диаметра протектора.

2. Богатые возможности содержит в себе идея совместного использования спектров антисовпадений и совпадений [11]. Любой спектрометр на антисовпадениях не обеспечивает полного подавления комптоновского континуума из-за конечной эффективности регистрации $\epsilon_{_{\! D}}$ кристаллом-протектором рассеянных в кристалле-анализаторе у-квантов. Из общего числа М комптоновских событий исходного аппаратурного спектра в режиме «антисовпадения» вычитается $M \times \varepsilon_n$ зарегистрированных комптоновских квантов. В спектре антисовпадений их остается $M(1 - \varepsilon_n)$. Если одновременно со спектром антисовпадений набирать спектр совпадений (M × $\epsilon_{\scriptscriptstyle D}$ комптоновских событий), то можно из спектра антисовпадений вычесть спектр совпадений, умноженный на некоторый, меньший единицы коэффициент К и добиться полного устранения комптоновского континуума. Легко понять, что $K = (1 - \varepsilon_0) / \varepsilon_0$. Математическое вычитание одного статистического массива из другого ведет к суммированию их дисперсий, поэтому всегда желательно иметь ε максимальной, а K минимальным. Метод подавления комптоновского континуума с использованием спектра совпадений имеет значительные преимущества перед чисто математическими процедурами со спектрами, поскольку он является аппаратно-программным и, следовательно, более статистически независим, поэтому вносит меньшие дополнительные погрешности.

В работе [11] контрастность спектров была увеличена более чем на порядок относительно полученных в стандартным антикомптоновском режиме. Степень увеличения контрастности ограничивается тем, что $\varepsilon_{\scriptscriptstyle D}$ является функцией энергии и

в общем случае не известна. Эффективность канала антисовпадений должна быть тщательно измерена экспериментально или промоделирована методом Монте-Карло. Если этого не делать, то вычитание скорректированного спектра совпадений должно производиться в отдельных, достаточно узких энергетических окнах. Решаемая в настоящей работе задача позволяет воспользоваться этим подходом.

Дополнительное исследование упомянутых выше возможностей улучшения контрастности измерений йода-131 и учет результатов этого исследования в конструкции и программном обеспечении будущего антикомптоновского спектрометра позволят в подавляющем числе случаев избегать проведения анализов на HpGe-спектрометрах.

Благодарности

Авторы выражают благодарность Н.Г. Швалеву за постановку интересной задачи и консультации, а также М.Е. Васяновичу и И.А. Капустину за деятельное участие в совместных экспериментальных исследованиях.

Acknowledgements

The authors are grateful to N.G. Shvalev for posing an interesting problem and advice, as well as to M.E. Vasyanovich and I.A. Kapustin for active participation in joint experimental research.

ЛИТЕРАТУРА

- 1. Debertin K., Helmer R.G. Gamma- and X-ray spectrometry with semiconductor detectors. Elsiver Publ. 1988. Amsterdam. 399 p.
- 2. Knoll G.F. Radiation Detection and Measurement (3-rd Edition): John Wiley & Sons, Inc., 2000. 802 p.
- 3. Вартанов Н.А., Самойлов П.С. Прикладная сцинтилляционная гамма-спектрометрия. М.: Атомиздат, 1969, 464 c.
- 4. Belousov M.P., Gromyko M.V., Ignatyev O.V. Scintillation g Spectrometers for Use at Nuclear Plants (Review) // Instruments and Experimental Techniques. 2017. V. 60, № 1. P. 1-19. 5. Recent developments in Geant4 / J. Allison [et al.] // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research. 2016. A835: P.186-225
- 6. Шарапов Э.И. Радиационный захват нейтронов легчайшими ядрами // Физика элементарных частиц и атомного ядра. Дубна. ОИЯИ: 1981. Т. 12, вып. 4. С. 962-1000. 7. Performance evaluation and optimization for a newly developed digital list-mode data acquisition Compton suppression spectrometer / W. Zhang [et al.] // Applied Radiation and Isotopes. 2013. V. 81. P. 96-102.
- 8. Performance evaluation of Compton suppression gamma spectrometer for low level environmental measurements / Baburajan A. [et al.] // Radiat. Prot. Environ. 2014. V. 37, № 1. P. 38-41.
- 9. Organic Scintillation Materials and Assemblies [электронный ресурс]: http://www.crystals.saint-gobain.com/sites/imdf. crystals.com/files/documents/organics-brochure.pdf / сайт компании "Saint-Gobain" (дата обращения 11.03.2017).

- 10. Патент № 2593617, МКИ G01Т 1/36. Способ улучшения энергетического разрешения сцинтилляционного гаммаспектрометра / Игнатьев О.В., Белоусов М.П., Морозов С.Г., Горбунов М.А. № 2015137802; заявл. 09.09.2015; опубл. 10.08.2016, Бюл. № 22.
- 11. Evans A.E., Brown B. Anticoincidence shielded gammaray spectrometer for nuclear reaction studies // Rev. Sci. Instr. 1966. V. 37, № 8. P. 991-999.

REFERENCES

- 1. Debertin K., Helmer R.G. Gamma- and X-ray spectrometry with semiconductor detectors. Elsiver Publ. 1988. Amsterdam. 399 p.
- 2. Knoll G.F. Radiation Detection and Measurement (3-rd Edition): John Wiley & Sons, Inc., 2000. 802 p.
- 3. Vartanov N.A., Samoilov P.S. Prikladnaia stsintilliatsionnaia gamma-spektrometriia [Applied scintillation gamma-spectrometry]. M.: Atom Publ., 1969. 464 p. (in Russian).
- 4. Belousov M.P., Gromyko M.V., Ignatyev O.V. Scintillation g-Spectrometers for Use at Nuclear Plants (Review). Instruments and Experimental Techniques, 2017, vol. 60, no. 1, pp. 1-19. DOI: 10.1134/S0020441217010171.
- 5. Allison J., Amako K, Apostolakis J., Arce P., Asai M., Aso T., Bagli E., Bagulya A., Banerjee S., Barrand G., Beck B.R., Bogdanov A.G., Brandt D., Brown J.M.C., Burkhardt H., Canal Ph., Cano-Ott D., Chauvie S., Cho K., Cirrone G.A.P., Cooperman G., Cortés-Giraldo M.A., Cosmo G., Cuttone G., Depaola G., Desorgher L., Dong X., Dotti A., Elvira V.D., Folger G., Francis Z., Galoyan A., Garnier L., Gayer M., Genser K.L., Grichine V.M., Guatelli S., Guèye P., Gumplinger P., Howard A.S., Hřivnáčová I., Hwang S., Incerti S., Ivanchenko A., Ivanchenko V.N., Jones F.W., Jun S.Y., Kaitaniemi P., Karakatsanis N., Karamitros M., Kelsey M., Kimura M., Koi T., Kurashige H., Lechner A., Lee S.B., Longo F., Maire M., Mancusi D., Mantero A., Mendoza E., Morgan B., Murakami K., Nikitina T., Pandola L., Paprocki P., Perl J., Petrović I., Pia M.G., Pokorski W., Quesada J.M., Raine M., Reis M.A., Ribon A., Ristić Fira A., Romano F., Russo G., Santin G., Sasaki T., Sawkey D., Shin J.I., Strakovsky I.I., Taborda A., Tanaka S., Tomé B., Toshito T., Tran H.N., Truscott P.R., Urban L., Uzhinsky V., Verbeke J.M., Verderi M., Wendt B.L., Wenzel H., Wright D.H., Wrightl D.M., Yamashita T., Yarba J., Yoshida H. Recent developments in Geant4. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, 2016, vol. A835, pp. 186-225. DOI: 10.1016/j. nima.2016.06.125
- 6. Sharapov E.I. [Radiation capcure of neutrons by lightest particles]. Fizika elementarnykh chastits i atomnogo iadra [Physics of elemental particles and atomic nucleus]. Dubna. Joint Institut of Nuclear Research: 1981, vol. 12, no. 4, pp. 962-1000 (in Russian).
- 7. Zhang W., Keeshan B., Mekarski P., Yi J., Ungar K. Performance evaluation and optimization for a newly developed digital listmode data acquisition Compton suppression spectrometer. Applied Radiation and Isotopes, 2013, vol. 81, pp. 96-102. DOI: 10.1016/j.apradiso.2013.02.002
- 8. Baburajan A., Rao D.D., Sudheendran V., Ravi P.M., Tripathi R.M. Performance evaluation of Compton suppression gamma spectrometer for low level environmental measurements. Radiation Protection and Environment, 2014, vol. 37, no. 1, pp. 38-41.
- 9. Organic Scintillation Materials and Assemblies. Available at: http://www.crystals.saint-gobain.com/sites/imdf.crystals. com/files/documents/organics-brochure.pdf (accessed 11 March 2017).

- 10. Ignatyev O.V., Belousov M.P., Morozov S.G., Gorbunov M.A. *Sposob uluchsheniia energeticheskogo razresheniia stsintilliatsionnogo gamma-spektrometra* [Method of improving of scintillation spectrometer energy resolution]. Patent RF, no. 2593617, 2016 (in Russian).
- 11. Evans A.E., Brown B. Anticoincidence shielded gammaray spectrometer for nuclear reaction studies. *Rev. Sci. Instr.*, 1966, vol. 37, no. 8. pp. 991-999.