

Новый метод высокоэффективной регистрации быстрых нейтронов твердотельными сцинтилляционными детекторами и новые возможности мультиэнергетической радиографии по определению взрывчатых веществ

В. Рыжиков

Институт сцинтилляционных материалов НАН Украины

Г. Харьков

АННОТАЦИЯ

Сравнительные измерения и анализ эффективности обнаружения проводились для быстрых нейтронов из 239Pu-Be источника в широком диапазоне энергий от En $\sim 0.1 \div 10$ MэB с использованием оксидных сцинтилляторов Bi4Ge3O12, Gd2SiO5, CdWO4, ZnWO4, ZnSe(Te,O), а также NaI(TI), CsI(TI) и 6LiI(Eu).

Экспериментально полученные эффективности регистрации быстрых нейтронов тяжелыми неорганическими (оксидными) сцинтилляторами (Z ≥ 50) достигают значений ~ 40-50%. Одним из наиболее вероятных механизмов, обеспечивающих такую высокую эффективность обнаружения быстрых нейтронов оксидными сцинтилляторами является реакция неупругого рассеяния (n, n'γ).

Сделан вывод, что тяжелые оксидные сцинтилляторы, которые в то же время являются эффективными гаммадетекторами, позволяют создавать высокоэффективные гамманейтронные детекторы, которые обеспечивают высокую эффективность обнаружения делящихся радиоактивных материалов. В настоящее время во всем мире значительное внимание уделяется проблеме ядерной безопасности с целью предотвращения ядерного терроризма.

Традиционно используемые системы РМ (радиационного мониторинга) применяют органические сцинтилляторы большого объема для гамма-детектирования и блоки детектирования нейтронов с использованием ³Не-пропорциональных счетчиков с замедлителем из полиэтилена. Использование замедлителя увеличивает габариты и вес блока детектирования, а также снижает эффективность регистрации нейтронов до 10%.

В статье [1] была показана возможность детектирования быстрых нейтронов с эффективностью 50-60% благодаря использованию сцинтилляторов с высоким Zэфф. Их недостатком является то, что наряду <u>с регистрацией не</u>йтронов, они также детектируют гамма-излучение.

Однако, для первичного обнаружения ядерных материалов важен сам факт немедленного обнаружения нелегальной транспортировки. Более тщательная инспекция и детальный анализ может быть проведен с применением спектрометрического оборудования после задержания подозрительных персон или транспорта.

^[1] M. Anelli, G. Battistoni, S. Bertolucci at al., "Measurement and simulation of the neutron response and detection efficiency of a Pb-scintillating fiber calorimeter", 2007, NIM, A580, pp. 368-372. 3

Радиационные Портал - Мониторы

Рис.1. Второе поколение РМ систем для контроля трактов и контейнеров. Они используют пластмассовые или NaI(TI) детекторы – 12000 см² площадь нейтронного детектора и 45600 см³ объем гамма-детектора из пластмассы.

10 20 30 40 50 60 70 amplitude pulses, arb. unit Рис.2. Гамма-спектр неупругого рассеяния нейтронов (2,5 МэВ) с использованием сцинтиллятора NaI(Tl) Ø25x25 мм.

^[2] V.N. Avaev, G.A. Vasilyev, A.P. Veselkin e.a., Experimental studies of gamma-radiation and neutron fields. 1974, p.392. ^[3] K.H. Beckurts, K. Wirtz, Neutron physics, 1964.

435 keV 632 keV



NUCSAFE INC.



Рис. 3. Сечение неупругого рассеяния (нижние кривые) нейтронов с энергий 4.5 МэВ и 7 МэВ на ядрах элементов с атомным номером Z. Полное сечение взаимодействия для тех же ядер приведено на верхней кривой [4].



Рис.4. Сечения радиационного захвата σ (n,γ) при эффективной энергии нейтронов 1 МэВ для ядер различного атомного веса [4].

[4] Н.А.Власов, *Нейтроны.* Москва: Наука, 1971, 552 с.

Эксперимент



Рис. 5. Структурная схема экспериментальной установки. 1-й этап: регистрируется полное излучение [БН + РБН]. 1 - ²³⁹Pu-Ве источник быстрых нейтронов; 2 – исследуемый сцинтиллятор, размеры 10×10×10 мм³; 3 – ФЭУ R1306; 4 - цилиндрический поглотитель тепловых нейтронов, выполненный из оксида гадолиния, Ø = 40 мм; 5 - крышка из оксида гадолиния, d = 10 мм; 6 – свинцовая защита, d = 40 мм; 7 - свинцовая защита, d = 4 мм.



Рис. 6. Структурная схема установки. 1 этап - регистрируется суммарное излучение [БH+РБH+TH]. $1 - {}^{239}$ Pu-Be-источник нейтронов; 2 – исследуемый сцинтиллятор размером $10 \times 10 \times 10$ мм³; 3 – ФЭУ R1306; 4 – цилиндрический поглотитель тепловых нейтронов, GdO, толщина стенки d = 10 мм; 5 – крышка, GdO, d = 10 мм; 6 – свинцовая защита, d = 40 мм; 7 – свинцовая защита, d = 4 мм; 8 – полиэтиленовый замедлитель \emptyset =150 мм.

Измерения эффективности регистрации быстрых нейтронов от ²³⁹Pu-Ве источника сцинтилляторами GSO, BGO, CWO, ZWO, CsI(Tl), ZnSe(Te) и LiI(Eu) выполнялись с использованием сцинтилляционного гамма-спектрометра, у которого АЦП имеет возможность регистрировать импульсы длительностью до 30 мкс. Калибровка шкалы спектрометра ДЛЯ низкоэнергетического участка выполнялась применением гамма-источников 241 Am, *E* γ = 59.54 кэВ и 57 Co, *E*_Y = 122.06 кэВ. Время двойного интегрирования усилителя спектрометра составляло ~ 30 мкс. Напряжение на ФЭУ составило 680 В. В состав спектрометра входил зарядочувствительный предусилитель. С целью получения однозначного соответствия между фактом взаимодействия нейтрона и появлением счётного импульса в рабочем окне регистрирующей системы постоянная времени интегрирования спектрометрического сигнала выбиралась для всех сцинтилляторов одинаковой и достаточно большой (~30 мкс).

7

Эффективность регистрации быстрых нейтронов определялась методом внутреннего счета гаммаквантов, появляющихся в сцинтилляторе из реакции (n, n'ү) на ядрах сцинтиллятора, имеющих энергию ~ 10-300 кэВ. Так как ²³⁹Ри-Ве-источник имеет существенный гамма-фон (примесь нуклида $^{241}Pu \rightarrow ^{241}Am \rightarrow ^{237}Np, Ey = 59.54$ K3B; ${}^{9}\text{Be}+{}^{4}\text{He} \rightarrow {}^{12}\text{C}^{*}+\text{n}, \text{ Ey} = = 4.43 \text{ M} \Rightarrow \text{B}; {}^{9}\text{Be}+{}^{4}\text{He} \rightarrow {}^{13}\text{C}^{*},$ $E_{\gamma} = 3.68 \text{ M}_{3}\text{B}; {}^{9}\text{Be}(n, \gamma){}^{10}\text{Be}^{*}, E_{\gamma} = 3.36 \text{ M}_{3}\text{B}; ramma$ спектр от ²⁴¹Pu, Еү < 10 МэВ), при измерении была использована процедура, позволяющая исключить гамма-фон с помощью экранирования источника свинцовой защитой. Кроме этого, окно обнаружения гамма-квантов выбиралось в диапазоне энергий Е ~ ~ 10-300 кэВ. Измеренная эффективность регистрации нейтронов составила ~ 40-50 %.

Измеренная эффективность регистрации потока быстрых и тепловых нейтронов от Pu-Be источника для гаммаизлучения в энергетическом диапазоне 20 – 300 кэВ.

Сцинтиллятор	ZnSe	CsI	Lij	LiI Li(n,a)T	GSO	ZnWO	CWO	BGO
Zэфф	33	54	52	52	59	61	66	75
Эффективность регистрации быстрых нейтронов, %	43	20	25	0.66	46	54	42	48
Эффективность регистрации быстрых нейтронов с замедлителем, %	75	25			90	70	46	83
Эффективность регистрации тепловых нейтронов, %			90	93	65	44	67	34

Сравнительная характеристика пешеходных инспекционных Порталов различных изготовителей

Инспекционная система	Активность γ-источника, мкКи			Масса ядерных материалов, г			Чувстви- тельность детектора нейтронов, импульс∙см ² /н	²³⁹ Pu+Be , г (4 см Pb)	Масса детек- тора, кг
	²⁴¹ A m	¹³⁷ Cs	⁶⁰ Co	²³⁵ U	²³⁸ U	²³⁹ Pu	Pu–α–Be		
RM-5000-07 "Полимастер"	60	0.8	0.8	30	125	0.6	350	2-3	70
"Янтарь-1 Р"	-	1.1	1.5	12.5	100	0.36	350	26	200
"Портал" — Р (ИСМА)	7	0.76	0.38	9	12	0.02	500	0.9	1.5
TSA PM-700AGN (США)	_	-	-	10		1		120	273

Для радиационного мониторинга применяются пешеходные радиационные мониторы (PM), представляющие собой устройства, предназначенные для обнаружения ядерных материалов (ЯМ) и радиоактивных веществ (PB) по их гамма- и/или нейтронному излучению. Требования к порогу обнаружения и другим техническим характеристикам радиационных мониторов ядерных материалов устанавливаются ГОСТ Р 51635-2000, согласно которому пешеходные РМ подразделяются на категории, приведенные в таблице.

Требования к массе обнаруживаемых ЯМ по ГОСТ Р 51635-2000

Категория пешеходного монитора	Значение порога о	бнаружения, г	Категория пешеходного монитора	Значение порога обнаружения, г	
гамма- излучения	СО из плутония	СО из урана	нейтронного излучения	СО из плутония	
IПg	0.03	1	I IIn	30	
II Пg	0.10	3	II IIn	50	
III Пg	0.30	10	III Пп	100	
IV IIg	1.00	64	IV IIn	250	

^[5] В.Рудченко, С.Звежинский. Пешеходные радиационное мониторы. Современные технологии безопасности, 2007, №3.



Рис.7.



ХФТИ — Харьковский физикотехнический институт

Граница Украины с Россией. Пропускной пункт Гоптовка (Харьковская область)

Рис.8







Рис.9. Спектр гамма-излучения от взаимодействия быстрых нейтронов с детектором CWO 10x10x10 мм и ЛФД S-8664-55 Hamamatsu.



Рис.10. Спектр гамма-излучения от взаимодействия быстрых нейтронов с детектором GSO 10x10x10 мм и ЛФД S-8664-55 Hamamatsu.

Кривая 1 – (Pu-Be) источник. Кривая 2 – Cf-252 источник. Ось X – энергия, отн. ед. Ось Y - количество счетов.

Эффективность регистрации быстрых нейтронов с детектором СШО (10x10x10 мм) и ЛФД S-8664-55 Hamamatsu.

Энергетический диапазон регистрации, кэВ	70 - 300	70 - 800	70 - 1800
Эффективность регистрации, %	9.6	28	35

ЧТО МЫ ЗНАЕМ

Эффективность регистрации быстрых нейтронов при использовании сцинтилляторов:

- 1. 5 7 % NaJ [V.N. Avaev, G.A. Vasilyev, A.P. Veselkin e.a., 1974, p.392. K.H. Beckurts, K. Wirtz, Neutron physics, 1964.]
- 2. 25 30 % PWO [M. Anelli, G. Battistoni, S. Bertolucci at al., 2007, NIM, A580, pp. 368-372.]
- 3. 30% жидкий сцинтиллятор [Ю. Акимов, А. Кузнецов, С.Лексин, 1956, ПТЭ, №2, с.123 127.]
- **4. 50% и более** [В.Д.Рыжиков, Б.В.Гринев, Г.М.Онищенко и др., 2010, IEEE Trans. Nucl. Sci., V. 57, № 5, part 2, c.2747-2751.]

ЧТО МЫ НЕ ЗНАЕМ

- Реальный механизм взаимодействия нейтронов с твердотельными СЦ.
- Только гипотеза

ЧТО НАМ ПРЕДСТОИТ СДЕЛАТЬ

Изготовить блок детектирования и монитор в целом с сцинтиллятором больших размеров и провести сравнительное со стандартным Порталом тестирование с реальными ядерными материалами. 15

выводы

Наши экспериментальные результаты показали, что возможно достижение высокой эффективности регистрации быстрых нейтронов за счет неупругого рассеяния, (n, n'ү) реакции как основной механизм взаимодействия с элементами ядер сцинтилляторов.

Достаточно высокое подавление фонового гамма-излучения достигается выбором энергетического диапазона спектрометра 20 – 300 кэВ с дополнительной свинцовой защитой.

Достигнутые экспериментальные результаты, а именно эффективность регистрации быстрых нейтронов до 50% твердотельными сцинтилляторами, может быть использована для разработки приборов и систем регистрации нейтронов нового поколения.

Для NaJ(Tl), CsI (Tl) также получена достаточно высокая эффективность регистрации нейтронов.

Это открывает возможность модифицировать стандартные порталы со спектрометрическим блоком на основе NaJ(Tl) для регистрации нейтронов наряду с сопутствующим гамма-излучением.

^[6] United States Patent Nº US 8,058,624 B2 *Method of detection of fast neutrons* B.Grinyov, ₁₆ V.Ryzhikov, L.Nagorna, G.Onischenko, L.Piven appl. Nº 12/435,146 Nov.15,2011

Новое поколение X-ray сканеров для антитеррористической инспекции.

NATO SfP № 982823 2008 – 2011 гг.

Терроризм становится основным фактором международной напряженности. Он составляет угрозу жизни и безопасности государств и их граждан. В качестве запрещенных к пересечению границ материалов и изделий следует выделить два вида, а именно взрывчатые вещества и ядерные материалы.

Для выявления скрытно перевозимых взрывчатых веществ созданы и получили широкое применение семейство приборов невскрывающего контроля почтовых отправлений, багажа пассажиров, автомобилей и траков. Преобладающими из них являются рентгено- и гаммателевизионные сканеры, конструкция и параметры которых совершенствуются с каждым годом. 17

Модель двухэнергетической линейки детекторов



^[7] Патент РФ №1639272, МПК GOIT Комбинированный детектор для рентгеновской вычислительной томографии. Вербицкий О., Гуляев Ф., Рыжиков В., Силин В., 1992Г., бюл. №12.

^[8] US Patent Nº US 6,445,765 B1, 2002. X-ray detecting apparatus. A. Frank, P.Schall, G. Geus.

^[9] International Patent N^oWO 2006/114745 A2, 2006. Improved detector array for spectral CT. s. Levene, P. Shapiro, A.Altman, W. Wainer.



Общая схема двухэнергетической радиографии с реконструкцией Zeff. Соответствующая схема синтеза включает смесь собранных основных элементов с L – "легким", М – "средним" и Н – "высоким" атомным номером. "Черно-белый" синтез соответствует 2-х энергетической радиографии, "трехцветная" схема (R – красный, G – зеленый и В – голубой) соответствует 3-х энергетике.

^[10] S. Naydenov, V. Ryzhikov. Determining chemical composition by the method of multi energy radiography. Technical Physics Letters, 2002, v.28, p.357-360.

^[11] V. Ryzhikov, B. Grinyov, A. Opolonin etc. Scintillation materials and detector on their base for non-destructive two 19 energy testing. Radiation Measurements, 2007, v.42, p.915-920.



Фотоэффект

$$\tau \sim N \cdot z^4 (h\nu)^{-3,5}$$

Комптон-эффект $\sigma \sim \frac{N \cdot z}{hv} \left(\ln \frac{2hv}{mc^2} + \frac{1}{2} \right)$

Образование пар $\chi \sim N \cdot z^2 (h \nu - 2mc^2)$

В настоящее время типичная схема двухэнергетического сканера включает 2 сцинтиллятора – «тонкий» ~0,5 мм для регистрации низких энергий (LED) и «толстый» (3 - 5 мм) для регистрации высоких (HED).

Недостатком системы является то, что LED сцинтиллятор воспринимает высокоэнергетическую часть спектра и наоборот. Мы попробовали применить техническое

ты попросовали применить техническое решение, которое устраняет этот недостаток благодаря использованию квазимонохроматического излучения, которое попадает только на данный детектор.



Полискан-4















^[12] Патент Украины № 44547А. Детектирующая система для рентгеновской интроскопии. В.Байбиков, В.Рыжиков, В.Свищ. Бюлл. №2 от 15.02.02 В рассматриваемом случае теория предсказывает точность в определении Zeff 90 – 95, что в применении может позволить близко к 100% вероятности выявления запрещенных материалов – взрывчатки и наркотиков.



Таким образом, экспериментальные результаты, полученные в данной работе, указывают на то, что использование спектрометрического подхода может заметно улучшить качество идентификации органических веществ по эффективному атомному номеру.

Предлагаемая методика использования массива значений параметра P, пропорционального величине ослабления потока квантов в низкоэнергетичной области в специальных, подготовленных заранее реперных образцах, сможет использоваться, например, для калибровки цветовой палитры мониторов наблюдения досмотровых таможенных систем. Это позволит расширить диапазон уверенной идентифицируемых веществ в сторону легких органических материалов, в т.ч. взрывчатых, наркотических и т.д. С точностью единиц процентов, в соответствии с теорией.

В то же время очевидно, что практическая реализация спектрометрической методики данного эксперимента затруднительна из-за сложности измерений и невозможности их проводить в реальном времени.

Однако, существует возможность его применения с использованием оригинальных фильтров, разработанных компанией MXF-technology и по схеме, приведенной на рис., что планируется нами провести в ближайшее время.



соответствии с работами, которые B проводили в рамках финансирования регулярного проекта НАТО, эксклюзивный производитель этих фильтров компания МХF, США, должна была поставить нам фильтр, селектирующий 3 энергии – низкую (около 30кэВ), среднюю (45 кэВ) и высокую (~60 кэВ). Она оценила это изготовление в 50 тыс. Евро, но несмотря на полученный 50% аванс работу не выполнила.

Концепция монохроматического рентгеновского излучения









Нами было принято решение попробовать реализовать концепцию, проводя многократные измерения с разными напряжениями на аноде излучателя.





Энергетическая зависимость эффективности поглощения рентгеновского излучения элементом из кристалла ZnSe разной толщины.

Спектр излучения рентгеновской трубки с разным анодным напряжением.



В качестве детекторов низких и средних (LED и MED) энергий использовались кристаллы ZnSe, для высоких (HED) – CsI.



3-энергетическое рентгеновское изображение с использованием 3D палитры



Тест - образцы, имитирующие взрывчатку

No1 TNT, Zeff = 7.08№2 пироксилин, Zeff = 7.34№3 циклонит, Zeff = 7.22 $N_{2}4$ TEN, Zeff = 7.38 №5 аматол, Zeff = 7.41 №6 пироксилин, Zeff = 8.07№7 пироксилин, Zeff = 7.51 №8 циклонит, Zeff = 7.12

С использованием 3-х координатной цветной палитры, мы смогли уверенно различать материалы разных Zeff с точностью 95%.



Образцы, имитирующие различную взрывчатку

Поток квантов из рентгеновской трубки 1 проходил через коллиматор 2, исследуемый образец 3, коллиматор детектора 9 и регистрировался детекторной системой на основе ФЭУ 4 и сцинтилляционного кристалла 5. Полезный сигнал с анода ФЭУ усиливался линейным спектрометрическим усилителем 6, обрабатывался АЦП 7 и накапливался в памяти ЭВМ 8. В качестве источника рентгеновского излучения использовалась рентгеновская трубка, работающая при напряжении 120 кВ, ток анода 15 мкА. Рабочие загрузки спектрометрического тракта не превышали 3000 с⁻¹.

На рис. представлена схема экспериментальной установки и аппаратный энергетический спектр X-ray фотонов. В процессе обработки выделялись сигналы от фотонов, прошедших через исследуемые образцы в интервале энергий ~20-50 кэВ и 50-100 кэВ.



Структурная схема эксперимента.

- 1- рентгеновская трубка;
- 2, 9 свинцовые коллиматоры;
- 3- исследуемый реперный образец;
- 4 ФЭУ;
- 5 сцинтилляционный кристалл ZnSe(O, Te);
- 6 линейный спектрометрический усилитель;
- $7 = \Delta \Pi \Pi$



Аппаратный энергетический спектр фотонов от рентгеновской трубки и радиоактивных источников Am-241, Cs-137, Co-57.



Теоретическая (О) и экспериментальная (□) зависимости величины ослабления прошедшего через реперы излучения, пропорционального сигналу от "тонкого" (низкоэнергетического) детектора как функция эффективного атомного номера Zэфф для широкого набора "легких" веществ.

^[13] V. Ryzhikov, S. Naydenov, G. Onyschenko, P. Lecoq, G.F. Smith "A spectrometric approach in radiography for detection of material by their Zeff. // Nuclear Instruments Methods, A, 2009, v.603, pp. 349 – 354.

33

Экспериментальные и теоретические результаты, полученные в данной работе показали, что используя спектрометрическое приближение, можно существенно повысить идентификацию органических материалов по их эффективному атомному номеру.

Грубая спектрометрия за счет выбора материала и толщины детектора позволяет различать вещества с отличием Zэфф до 5%.

Точная спектрометрия при использовании спектрометрического тракта определяет Zэфф с точностью до 1%.

Принципиальным в достижении высокой точности без спектрометрического тракта является наличие квазимонохроматического источника излучения.

Использование комбинированной 3D палитры расширяет область определения веществ и может быть применено в медицине и для идентификации взрывчатки.

^[14] S.V. Naydenov, B.V. Grinyov, V.D. Ryzhikov, "X-ray radiographic method of recognition of materials and device for its realization", United States Patent 7912177 Issued on March 22, 2011. 34



Благодарю За

внимание !