Национальная академия наук Украины Институт сцинтилляционных материалов

Состояние и перспективы развития функциональных материалов для науки и техники ®

АСПЕКТЫ СЦИНТИЛЛЯЦИОННОЙ ТЕХНИКИ

Под редакцией А.В. Гектина

Харьков 2017

```
Состояние и перспективы развития функциональных
материалов для науки и техники
Аспекты сцинтилляционной техники. (под редакцией А.В. Гек-
тина) – Харьков: "ИСМА", 2017. – 264 с.
ISBN 966-02-2555-5 (серия)
ISBN 978-966-02-8238-4
```

Данный сборник статей продолжает тематику ранее изданных Институтом сцинтилляционных материалов книг по наиболее актуальным и современным тенденциям развития сцинтилляционных детекторов и материалов для их инженерии.

Выделены четыре важных направления. Прежде всего, следует выделить тенденцию последних лет – стремление не столько к поиску новых сцинтилляционных материалов, сколько к совершенствованию уже известных и обладающих резервами к повышению их сцинтилляционной эффективности. Уже имеющиеся технологии получения классических материалов позволяют быстро и с малыми капитальными вложениями адаптировать такие новации к промышленному производству и быстрому внедрению в практику. Это автоматически спровоцировало новый толчок инженерии новых детекторов радиации, прежде всего в области детектирования нейтронов. Современные детекторы развиваются как за счет совершенствования собственно материалов, так и фотоприемников. Адаптация к инженерии детекторов кремниевых ФЭУ без сомнения формирует новую эпоху в детектировании радиации. Этому посвящен второй раздел книги.

Третий раздел сборника посвящен традиционному научному направлению – исследованиям физических процессов при поглощении энергии различных ионизирующий частиц. Именно такого рода данные позволяют сделать сцинтилляционную физику все более и более предсказуемой, сформировать новые тренды в сцинтилляционном материаловедении.

Многообразие применений детекторов радиации заставляет уделять все больше внимания методологическим аспектам регистрации излучений. Возможность получения разных параметров сцинтиллятора в зависимости от методологии измерения требует особого внимания к метрологическим аспектам сцинтилляционных измерений. Этот раздел появился впервые в истории сборников ИСМА, что отражает серьезность данного направления деятельности.

Хочется надеяться, что данный сборник даст не только множество полезной информации, но позволит увидеть взаимосвязь между различными тенденциями детектировании радиации.

Главный редактор серии академик НАН Украины Гринев Б.В. Отв. секретарь к. ф.-м. н. Щербина Е.В.

ISBN 966-02-2555-5 (серия) ISBN 978-966-02-8238-4

© ИСМА 2017

Содержание

Совершенствование сцинтилляционных материалов и детекторов

Улучшение временных характеристик пластмассового сцинтиллятора В.Н. Переймак, П.Н. Жмурин, Д.А. Елисеев, В.Н. Лебедев 6
Исследование методов улучшения однородности светосбора в кристаллах для электромагнитного калориметра эксперимента «COMET» В. Калинников, Е. Величева, З. Цамалаидзе, А. Лобко, О. Мисевич
К вопросу о различных концепциях оценки качества результатов измерения светового выхода сцинтилляторов Б.В. Гринев, Н.Р. Гурджян, О.В. Зеленская, В.Р. Любинский, Л.И. Мицай, Н.И. Молчанова, В.А. Тарасов
Оптимизация спектра ионизирующего излучения в рентгеновских системах личного досмотра Д.М. Касюк, Д.В. Поздняков, В.Н. Линев, К.В. Сосенко
Применение кластерных методов для анализа динамических сцинтиграфических изображений в радионуклидной диагностике
1.1. Долини

Инженерия новых детекторов

Исследование возможности применения поверочной
установки нейтронного излучения, как источника
гамма-квантов с энергиями до 10 МэВ для калибровки
спектрометров
Д.И.Комар, Р.В. Лукашевич, С.А.Кутень 114
Детектор тепловых нейтронов на основе оптимизированной по составу смеси Zns(Ag)/ ⁶ LiF
В.А. Тарасов, Л.А. Андрющенко, И.М. Дубцов,
О.Л. Шпилинская, Л.Н. Трефилова, В.Ю. Яковлев 122
Композиционный детектор ⁶ Lil(Eu) для регистрации тепловых нейтронов
А. Бояринцев, А. Бобовников, А. Гектин, С. Ковальчук, Т. Непокупная, Ю. Онуфриев, В. Тарасов
Светособирание в композиционном детекторе для физики высоких энергий Ю. Онуфриев, А. Бояринцев, А. Бобовников, А. Гектин, Б. Гринев,
С. Ковальчук, Т. Непокупная 141
Физика сцинтилляторов
Спектрально-люминесцентные и сцинтилляционные свойства кристаллов K ₂ BaX ₄ :Eu ²⁺ (X=Cl, Br)
А.С. Пушак, Н.В. Реброва, А.Ю. Гриппа, Т.Е. Горбачева,
В.В. Вистовский, С.В. Мягкота, В.Л. Чергинец, В.А. Тарасов 149
Искажения спектров фотолюминесценции побочным излучением и способы его устранения
В.А. Штительман, И.Н. Дубцов, Л.Н. Трефилова,
В.Ю. Яковлев · · · · · 161
Природа люминесценции наведенных облучением центров окраски в Csl:Tl и их роль в сцинтилляционном процессе В.Д. Алексеев, А.Л. Шпилинская, В.Ю. Яковлев, А.Н. Карнаухова, Л.Н. Трефилова, Е.В. Тарахно

О роли метрологического обеспечения в процессе производства кристаллов	
В.Р. Любинский, Н.И. Молчанова, Л.Л. Ващенко 1	86
Международные стандарты IEC для сцинтилляционной техники	
Гринев Б.В., Любинский В.Р., Даниленко Ю.А 1	91
Применение сцинтилляционных блоков детектирования для калибровки полей гамма-излучения по мощности дозы <i>Р.В. Лукашевич, В.Д. Гузов, Г.А. Фоков, В.А. Кожемякин</i> 1	99
Разработка модели источника излучения для медицинских диагностических рентгеновских аппаратов К.О. Макаревич, В.Ф. Миненко, С.А. Кутень, К.А. Веренич 2	208
Модели радиального отражателя для подготовки малогрупповой библиотеки сечений для диффузионного кода DYN3D с помощью Монте-Карло кода С SERPENT <i>К.И. Ушева, С.А. Кутень, А.А. Хрушинский, Л.Ф. Бабичев</i> 2	23
, , , <u>r</u> , , ,	

УЛУЧШЕНИЕ ВРЕМЕННЫХ ХАРАКТЕРИСТИК ПЛАСТМАССОВОГО СЦИНТИЛЛЯТОРА В.Н. Переймак, П.Н. Жмурин, Д.А. Елисеев, В.Н. Лебедев Институт сцинтилляционных материалов НАН Украины

Аннотация

Предложен новый метод увеличения скорости нарастания сцинтилляционного импульса в пластмассовом сцинтилляторе без уменьшения его световыхода. Он основан на применении полимерных основ с повышенной подвижностью электронов, что приводит к ускоренной рекомбинации электронов с дырками и последующему образованию возбужденных состояний. Синтезированы вещества с сильными электрон-донорными свойствами: трифениламин и толил-карбазол. Исследована их растворимость в полистирольной матрице. Установлено, что оба вещества обладают растворимостью в полистироле более 40 масс.%. На их основе созданы новые ПС с улучшенными временными характеристиками и увеличенным световыходом. Полученные кривые затухания сцинтилляционного импульса позволили определить время фронта нарастания для двух ПС. Для ПС с трифениламином это 0,7 нс, а для ПС с толил-карбазолом – 0,4 нс. Время фронта нарастания стандарного ПС UPS-923А - 1,1 нс. Световыход ПС с трифениламином и ПС с толил-карбазолом составил 122 % и 143 % соответственно по сравнению с UPS-923А.

1. Введение.

В экспериментальной ядерной физике и физике элементарных частиц для точной временной привязки часто используют «быстрые» пластмассовые сцинтилляторы (ПС), которые имеют меньшее время нарастания сцинтилляционной вспышки по сравнению с ПС общего применения типа UPS-923A. Этот ПС на основе полистирола содержит 2 мас.% паратерфенила (р-ТР) и 0,1 мас.% 1,4-бис-2-(5-фенилоксазолил)-бензола (РОРОР) и имеет время нарастання сцинтилляционного импульса 0,8 нс от уровня 0,1 до 0,9, время спада ~ 3 нс и световой выход 57% относительно антрацена [1, 2].

Быстрые ПС получают путем ускорения процесса высвечивания, что достигается либо путем увеличения содержания первичной добавки (акцептора), либо добавлением в состав ПС специальных тушителей люминесценции. В обоих случаях укорочение временных характеристик достигают путем тушения. В первом случае возникает концентрационное тушение свечения возбужденных состояний активатора, во втором - частичная безызлучательная дезактивация этих состояний молекулами тушащей добавки. Недостатком этих способов является значительное уменьшение интенсивности сцинтилляционной вспышки, что уменьшает точность временной привязки и усложняет методику эксперимента. Так, известный быстрый ПС марки EG-232 (другие названия NE 111, BC422) [3, 4] на основе поливинилтолуола (PVT) с повышенным содержанием активатора (содержит 5,0 мас.% [2-фенил-5(4-бифенилил-1,3,4-оксадизол] (PBD)) имеет время нарастания сцинтилляционной вспышки 0,35 нс от уровня 0,1 до 0,9 и пониженную сцинтилляционную эффективность 55% относительно антрацена, что меньше, чем в ПС общего назначения типа BC-408 или EJ-200 (CE = 67% относительно антрацена) [5-7].

Быстрый ПС марки EJ-232Q (BC422Q) дополнительно содержит в качестве тушителя 0,5 мас.% бензофенона [8, 9], что позволяет уменшить время нарастання до 0,11 нс, но при этом световыход уменьшается до 19% отн. антрацена и резко уменьшается прозрачность материала ПС [10].

Таким образом, традиционные способы ускорения люминесценции приводят к значительному уменьшению световыхода. В данной работе предложен способ ускорения люминесценции без уменьшения светового выхода.

Общеизвестно, что процесс образования сцинтилляционной вспышки условно можно разбить на два этапа:

- Образование электрон-«дырочных» пар и их рекомбинация с генерацией возбужденных состояний (скорость процесса существенно зависит от свойств подвижности носителей заряда в полимерной среде)
- Процесс сбора энергии возбуждения активатором полимерной основы (эффективность преобразования возбужденных состояний в фотоны люминесценции зависит от наличия каналов потерь энергии)

Все предыдущие исследования касались второго этапа. Данная работа касается изменения условий подвижности зарядов в полимерной основе, что должно приводить к улучшению временных характеристик ПС, как показано в формулах (1), (2), (3). Известно, что введение электрондонорных органических добавок в состав полимерной композиции способствует повышению подвижности электронов в полимерной среде: подвижность электронов полистирола может быть увеличена почти на три порядка: от $2x10^{-9}$ cm²V⁻¹s⁻¹ до $2x10^{-6}$ cm²V⁻¹s⁻¹ [11].

$$\langle v \rangle = \mu E$$
 (1)

$$D = \frac{1}{2} \langle v \rangle \langle \lambda \rangle \tag{2}$$

$$t = \frac{R^2}{D} \sim \frac{1}{\mu} \tag{3}$$

 $\langle v \rangle$ – средняя скорость зарядов, μ – подвижность зарядов, E – напряженность электрического поля, $\langle \lambda \rangle$ – средняя длина свобод-



Рис. 1. Структурная формула триариламинов.

ного пробега, *D*-коэффициент диффузии, *t* – время рекомбинации зарядов, *R* – радиус разлета электронов при ионизации.

Для того, чтобы введение электрон-донорной добавки имело эффект, ее концентрация в матрице должна достигать определенного значения. По теории перколяции, которая достаточно широко используется для описания проводимости неупорядоченных сред, среда становится проводящей, когда концентрация носителей превышает некоторые пороговые значения, называемые перколяционным порогом [12]. При этом перколяционный порог концентрации донора заряда превосходит значение нескольких десятков процентов.

Для использования в составе ПС, к электронодонорным добавкам применяются жесткие физико-химические и спектральнолюминесцентные требования:

- растворимость в полистирольной матрице
- спектральная совместимость с люминесцентными добавками
- химическая и термическая устойчивость
- синтетическая доступность

Триариламины наиболее полно соответствуют перечисленным требованиям. Высокая подвижность неподеленной электронной пары центрального атома азота делает эти соединения органическими полупроводниками обладающими высокой дырочной проводимостью. Схема, показывающая сторение триариламинов, показана на рис. 1.

G		Растворимость, ω(%)		
Соединение	Структурная формула	St, 20 °C	St, 70 °C	PSt
Трифениламин		10	50	45
Тетрафенил- бензидин		4	8	6
ДифениламиноPPD		5	10	8
Фенилкарбазол		8	40	35
Толилкарбазол		10	50	45

Табл. 1. Список использованных триариламинов, их структурные формулы и растворимости.

2. Эксперимент

Для получения «быстрых» ПС, был синтезирован ряд электронодонорных добавок, показанных в табл.1 вместе с их растворимостями. Для создания сцинтилляционной композиции с высоким содержанием донорной компоненты наиболее подходят два соединения – трифениламин и толилкарбазол. На основе последних двух добавок были созданы новые ПС.

Невысокий квантовый выход триариламинов требует введения в сцинтилляционную композицию добавки-активатора для эффективного безызлучательного снятия энергии возбуждения: для трифениламина – 2,5-диметил-1,4-дистирилбензол (DMDSP), а для толилкарбазола – 1,4-*бис*(5-фенилоксазолил-2)бензол (POPOP)

Образцы ПС получали известным способом термической полимеризации с последующей механической обработкой.

В ампулу из термостойкого стекла диаметром 18 мм помещали 40 мас.% (64 г.) трифениламина или толилкарбазола и 1 мас.% (1,6 г) DMDSP или POPOP и добавляли свежеперегнанный стирол до общей массы раствора 160 г. Для полного растворения добавок ампулу нагревали до 78°C и продували аргоном в течение 6 мин. После этого ампулу запаивали, помещали в термостат и при температуре 155 °C выдерживали 96 часов. Затем термостат охлаждали со скоростью 5°C/час до 40°C, ампулу вынимали, охлаждали до комнатной температуры, после чего извлекали заготовку ПС.

Из полученной заготовки путем механической обработки получали готовые полированные образцы ПС в виде цилиндров диаметром 16 мм и толщиной 10 мм для измерения световыхода, а также в виде дисков диаметром 10 мм и высотой 0,5 мм для измерения временных характеристик.

Для полученных образцов были сняты спектры поглощения и излучения, световой выход и кинетика люминесценции.

Спектры возбуждения и люминесценции образцов были получены с использованием спектрофлоуриметра FluoroMax4.

Измерение светового выхода проводилось на сцинтилляционной установке с фотоэлектронным умножителем (ФЭУ) Hamamatsu R1307 при напряжении на аноде ФЭУ Va = 920 В. Сигнал с анода ФЭУ подавался параллельно на первый канал цифрового осциллографа RIGOL DS1302CA (300 МГц, 2GS). Затем устанавливалось: входное сопротивление первого канала 50 Ом, чувствительность первого канала 50 мВ / дел, скорость горизонтальной развертки



Рис. 2. Блок-схема установки для снятия кинетики сцинтилляционного импульса.

– 20 нс / дел, режим запуска развертки по первому каналу – одиночный, порог запуска – 20 мВ. ПС устанавливался на входное окно ФЭУ с помощью жидкости для оптического контакта и облучался конверсионными электронами с энергией 975 кэВ от источника Ві-207. Данные, поступающие с осциллографа обрабатывались с помощью компьютера. В исходном файле для каждого зарегистрированного события сохранялось значение площади полного импульса (Qtotal). Затем строилось распределение числа событий по Qtotal, с которого определялось положение пика конверсионных электронов с энергией 975 кэВ.

Время нарастания сцинтилляционной вспышки измеряли методом задержанных совпадений фотонов на временном старт-стопном спектрометре с двумя быстрыми ФЭУ Hamamatsu R9800 (фронт нарастания 0.9 нс, разброс времени пролета 270 пс), показанным на рис 2. Коллимированный пучок бета-частиц от радиоактивного источника Sr-90 проходил через тонкий образец исследуемого ПС и падал на детектор Черенкова из кварца, сигнал от которого регистрировался одним из ФЭУ и формировал стартовый импульс.



Рис. 3. Аппаратная функция установки для измерения кинетики сцинтилляционного импульса.

Второй ФЭУ работал в однофотонном режиме и регистрировал фотоны от исследуемого образца ПС, который был изготовлен в виде полированного диска диаметром 10 и толщиной 0,5 мм.

Стартовый и стоповый сигналы с анодов ФЭУ поступали на входы двухканального цифрового осциллографа Rigol DS1302CA, который через USB-порт соединялся с персональным компьютером. Отношение стоповых сигналов к стартовым во время измерения не превышало 2%.

Формы стартового и стопового импульсов в цифровой форме из буфера осциллографа записывались в память компьютера. Затем, с помощюь специальной программы определялся временной интервал между стартовым и стоповым импульсами. При этом временная привязка осуществлялась на половине высоты каждого импульса.

Аппаратное временное разрешение установки определяли из експериментального временного спектра, который получали путем замены образца ПС на образец таких же размеров из полиметилметакрилата (ПММА). ПММА не сцинтиллирует, но при прохождении быстрого электрона формирует короткий импульс



Рис. 4. Спектры возбуждения и люминесценции состава из 70 масс.% полистирола и 30 масс.% ТРА.

излучения Черенкова. Зарегистрированный таким образом аппаратный временной спектр представлен на рис. 3.

В результате аппроксимации интерументальной кривой (рис.4) функцией Гаусса получаем, что ширина на полувысоте аппаратной функції ПШПВ = 490 пс, σ = 210 пс и время нарастания $t_{0,1-0,9}$ = 350 пс. Таким образом, спектрометр позволяет визуально (без учета аппаратного разрешения) различать экспериментальные спектры с временами нарастания $t_{0,1-0,9} > 350$ пс.

3. Результаты

Нами был получен ряд образцов ПС с трифениламином. При конценрации трифениламина на пределе растворимости наблюдается наименьшее время нарастания сцинтилляционного импульса, однако наблюдается падение светового выхода по сравнению с образцом с концентрацией трифениламина 40%.

Трифениламин (ТРА) содержит азот в третичном состоянии, что делает его веществом с ярко выраженными электрон-донорными свойствами. При этом полимерная матрица, модифицированная ТРА, приобретает свойства полупроводника р-типа [13-18]. При таком высоком содержании ТРА значительно увеличивается под-



Рис 5. Энергетические спектры сцинтилляционных импульсов нового ПС с ТРА и станартного ПС.

вижность первичных электрон-дырочных пар, которые образуются ионизирующей частицей, что приводит к ускоренной рекомбинации зарядов и, соответственно, к уменьшению времени нарастания сцинтилляционной вспышки.

На рис. 4 показаны спектры возбуждения и люминесценции композиции из полистирола и 30 масс.% ТРА.

На рис. 5 показаны энергетические спектры сцинтилляционных импульсов нового ПС с ТРА и станартного ПС. Из полученных спектров видно, что световыход нового ПС составляет 65% от антрацена или 115% по отношению к стандартному ПС.

На рис. 6 показаны временные спектры сцинтилляционной вспышки ПС с 40 % трифениламина, стандартного ПС и аппаратная функция. Фронт нарастания сцинтилляционной вспышки от уровня 0,1 до 0,9 нового ПС при содержании трифениламина 40% составляет 700 пс, что почти в два раза меньше чем у стандартного ПС [19].

Также был получен ряд образцов с толилкарбазолом. При конценрации толилкарбазола на пределе растворимости наблюдается наименьшее время нарастания сцинтилляционного импульса,



Рис 6. Временные спектры сцинтилляционной вспышки ΠC с 40 % трифениламина, стандартного ΠC и аппаратная функция.



Рис. 7. Спектры возбуждения и люминесценции композиции из 70 масс.% полистирола и 30 масс.% толилкарбазола.

однако наблюдается падение светового выхода по сравнению с образцом с концентрацией толилкарбазола 40%.

На рис. 7 показаны спектры возбуждения и люминесценции композиции из полистирола и 30 масс.% толилкарбазола.

На рис. 8 показаны энергетические спектры сцинтилляционных импульсов от нового ПС с толилкарбазолом и станартного ПС. Из



Рис. 8. Энергетические спектры сцинтилляционных импульсов от нового ПС с ТРА и станартного ПС.



Рис. 9. Временные спектры сцинтилляционной вспышки ПС с 40 % толилкарбазола и стандартного ПС.

полученных спектров видно, что световыход нового ПС составляет 79% от антрацена или 140% по отношению к стандартному ПС.

На рис. 9 показаны временные спектры сцинтилляционной вспышки ПС с 40 % толилкарбазола и стандартного ПС. Фронт нарастания сцинтилляционной вспышки от уровня 0,1 до 0,9 нового ПС при содержании трифениламина 40% составляет 400 пс, что почти в три раза меньше чем у стандартного ПС *t*.

ПС	Эксперимент	Аппроксимация сверткой		
IIC	t0.1-0.9, нс	t0.1-0.9, нс	σ, нс	т, нс
UPS-923A	1.1	0.8	2,51	0.49
40% TPA	0.7	0.49	2,36	0.26
40% TCz	0.4	0.28	2,08	0.167
MMA	0.35			

Табл. 2. Данные, полученные аппроксимацией экспериментальных данных формулой (4).

Экспериментальные данные, показанные на рис. 6 и рис. 9, были аппроксимированы сверткой функции Гауссиана и экспоненты [20], показанной в формуле (4). Данные аппроксимации записаны в табл. 2. Из табл. 2 видно, что фронт нарастания функции Гаусса для всех образцов также является более быстрым для новых сцинтилляторов, что подтверждает увеличение скорости рассасывания зарядов в полимерной среде с повышенной подвижность зарядов.

$$I(t) = A \int_{0}^{t} exp(-\frac{(t'-t_0)^2}{2\sigma^2}) exp(-\frac{t-t'}{\tau}) dt'$$
(4),

где A – амплитуда импульса, t_0 – центр распределения Гаусса, σ – стандартное отклонение, а τ – время затухания люминесценции.

4. Выводы

Показано, что добавление в матрицу сцинтиллятора электрондонорных веществ приводит к более быстрой рекомбинации зарядов после ионизации, что означает увеличение скорости нарастания сцинтилляционной вспышки без потери светового выхода. Увеличение светового выхода объясняется более низким потенциалом ионизации матрицы, модифицированной с помощью электрондонорных добавок. Также с помощью этого метода был создан сцинтиллятор с фронтом нарастания 0,4 нс и световыходом 140% относительно UPS-923A, или 79% от антрацена.

Литература

- A.Artikov, J.Budagov I. Chirikov-Zorin et al. "Properties of the Ukrainian polystyrene-based plastic scintillator UPS 923A" / Nucl.Instrum.Meth.A555, (2005) pp.125-131.
- 2. Гриньов Б.В., Сенчишин В.Г. Пластмасові сцинтилятори. – Харків.: Акта, 2003. – 324с (див. стор. 316).
- 3. http://www.eljentechnology.com/index.php/products/plasticscintillators/68-ej-232
- 4. Plastic Scintillators /BICRON Catalogue.
- 5. B.Bengtson and M.Moszynski. Study of primary energy transfer process in ultrafast plastic scintillators. /Nuclear Instruments and Methods, v.155 (1978) pp.221-231
- B.Bengtson and M.Moszynski. Status of timing with plastic scintillation detectors /Nuclear Instruments and Methods v.158 (1979) pp.1-31
- 7. http://www.detectors.saint-gobain.com/Plastic-Scintillator.aspx
- 8. http://www.eljentechnology.com/index.php/products/plasticscintillators
- 9. http://arxiv.org/ftp/arxiv/papers/1602/1602.00944.pdf
- 10. R. Hoischen et al., Fast timing with plastic scintillators for inbeam heavy-ion spectroscopy /Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 654 (2011) 354.
- Jose-Luis Maldonado, Maximilienne Bishop, Canek Fuentes-Hernandez. Effect of Substitution on the Hole Mobility of Bis(diarylamino)biphenyl Derivatives Doped in Poly(Styrene) //Chem. Mater. 2003, 15, 994-999
- 12. Monberg et al. Chem. Phys. Lett. 1978, 58, 492.
- Physics of Organic Semiconductors. Edited by W. Britting, 2005, WILEY-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA, Weinheim.
- 14. Fatma Baycan Koyuncua, Sermet Koyuncub, Eyup Ozdemira. A novel donor-acceptor polymeric electrochromic material

containing carbazole and 1,8-naphtalimide as subunit // Electrochimica Acta 55 (2010) 4935–4941.

- Chia-Shing Wu, Yun Chen. Copolyfluorenes Containing Pendant Bipolar Carbazole and 1,2,4-Triazole Groups: Synthesis, Characterization, and Optoelectronic Applications. //JOURNAL OF POLYMER SCIENCE PART A: POLYMER CHEMISTRY 2011, 49, 3928–3938
- 16. Heinz Bдssler and Anna Kuhler Charge Transport in Organic Semiconductors Top Curr Chem (2012) 312: 1–66
- 17. M. Redecker and H. Bassler. Determination of the Hole Mobility in Organic Light-Emitting Diodes via Transient Absorption //J. Phys. Chem. B 1997, 101, 7398-7403.
- V. Mimaite, J.V. Grazulevicius, J. Ostrauskaite, V. Jankauskas. Synthesis and properties of triphenylamine-based hydrazones with reactive vinyl groups, //Dyes and Pigments 95 (2012) 47, 52.
- Патент Украины № 106857, G01T 1/203, C09K 11/06. Пластмасовий сцинтилятор. Бедрик А. И., Жмурин П. Н., Гринев Б. В., Елисеев Д. А, Лебедев В. Н., Переймак В. Н, Тицкая В.Д. Патент опубл. 10.10.2014, бюл. 19/2014.
- Патент Украины № 111126, G01T 1/203. Пластмасовий сцинтилятор. Гринев Б.В., Жмурин П.Н., Елисеев Д.А., Лебедев В.Н., Переймак В.Н., Тицкая В.Д. Патент опубл. 25.03.2016, бюл. 6/2016.

ИССЛЕДОВАНИЕ МЕТОДОВ УЛУЧШЕНИЯ ОДНОРОДНОСТИ СВЕТОСБОРА В КРИСТАЛЛАХ ДЛЯ ЭЛЕКТРОМАГНИТНОГО КАЛОРИМЕТРА ЭКСПЕРИМЕНТА «COMET»

В. Калинников¹, Е. Величева¹, З. Цамалаидзе¹ А. Лобко², О. Мисевич²

¹ Объединенный институт ядерных исследований, Дубна, Россия ² Институт ядерных проблем, БГУ, Минск, Беларусь

Аннотация

Исследованы процессы, вызывающие потери света по длине кристалла, в зависимости от положения трека частицы в однородном сегментированном электромагнитном калориметре. Разработана методика улучшения равномерности светосбора за счет применения оптимальных светоотражающих материалов и способов обертывания сцинтилляционных кристаллов с высоким показателем преломления.

Экспериментально измерено угловое распределение выделенной энергии и возникающая при этом ошибка измерения энергии в зависимости от положения трека частицы в сегментированном калориметре.

Введение

В физических экспериментах электромагнитные калориметры (ЭМК) широко используются для измерения энергии и идентификации частиц. К преимуществам ЭМК как детекторов следует отнести: во-первых, измерение энергии частиц в широком диапазоне; во-вторых, увеличение относительного энергетического разрешения с ростом энергии как \sqrt{E} , где E – энергия падающей частицы; в-третьих, детектирование как заряженных, так и нейтральных частиц; в-четвертых, возможность разделять фотоны, электроны, протоны, пионы, а также использовать калориметры в качестве триггерных систем отбора событий [1, 2].

По конструктивному исполнению ЭМК подразделяются на однородные («гомогенные») сегментированные в продольном или поперечном направлениях и неоднородные («сэмплинг-калориметры»). Сэмплинг-калориметры широко применяются в физике высоких и сверхвысоких энергий.

Основное преимущество однородных ЭМК – высокое энергетическое разрешение. Пространственное разрешение ЭМК зависит от размеров ячеек калориметра в поперечном относительно траектории частиц направлении [1, 2].

Однородные сегментированные ЭМК универсальны. Они обеспечивают требуемую длину взаимодействия и необходимую компактность, так как при высокой плотности кристаллов имеют минимальную радиационную длину. Однородные сегментированные ЭМК позволяют одновременно измерять не только энергию, но и координаты и направление вылета частиц. В случае, если ЭМК будет использоваться для определения пространственного положения трека, поперечные размеры кристаллов (ячеек) должны быть сравнимы с радиусом Мольера R_M ($R_M \cong X_0 / E_c$), где X_0 – радиационная длина, E_c – критическая энергия). При этом его величина должна быть минимальной, чтобы уменьшить поперечные размеры электромагнитных ливней [1 – 3]. На практике выбор поперечных размеров ячеек калориметра – результат компромисса между требуемой величиной пространственного разрешения и числом каналов считывания.

Энергетическое разрешение однородных сегментированных ЭМК может ухудшаться из-за флуктуаций, обусловленных потерями энергии электромагнитного ливня в чередующихся слоях активной (сцинтиллятор) и поглощающей (светоотражающие покрытия) средах [1, 2 – 4]. Кроме того, при использовании в них кристаллов с большим показателем преломления значительная часть эмитированных фотонов попадает в «оптическую ловушку» из-за полного внутреннего отражения от полированных поверхностей кристалла, в связи с чем, более 50% сцинтилляций не достигает фотоприемника [2, 5].

Необходимо отметить, что для однородных сегментированных ЭМК, находящихся в магнитном поле, электромагнитные ливни всегда не параксиальны. Поэтому расстояния от точки начала трека электрона в кристалле до фотодетектора неодинаковы и значения световыхода из-за потери света будут отличаться. Возникающая при этом неоднородность светосбора по длине кристалла, ухудшает энергетическое разрешение и точность измерения энергии, выделенной в калориметре [2, 5, 6].

Таким образом, для однородных сегментированных ЭМК, находящихся в магнитном поле, на точность измерения выделенной энергии и энергетическое разрешение влияют:

- потери электромагнитного ливня в материале светоотражающего покрытия и утечки электромагнитного ливня за пределы сцинтиллятора, возникающие при прохождении высокоэнергетической частицы через чередующиеся слои ячеек калориметра;
- неоднородность светосбора в ячейках калориметра, зависящая от положения трека в кристалле;
- зависимость выделившейся в ячейке энергии от угла между треком частицы и осью ячейки.

В этой связи, целью данной статьи является разработка методов повышения точности измерения энергии, выделенной в однородном сегментированном ЭМК, при прохождении пучка 105 МэВ электронов за счет применения оптимальных светоотражающих материалов и способов обертывания сцинтилляционных кристаллов с высоким показателем преломления.

1. Особенности светосбора в кристаллах ЭМК в магнитном поле

Возможность измерения энергии с помощью калориметров основана на пропорциональности между величиной энергии первичной частицы и величиной энерговыделения в веществе сцинтиллятора. Соотношение между этими величинами в калориметре определяется: параметрами сцинтиллятора, конструкцией калориметра, чувствительностью детектора к электронам и фотонам малой энергии и др.

На точность измерения энергии в калориметре влияют стохастические флуктуации процесса образования электромагнитного ливня, а также толщина и параметры пассивных элементов, окружающих сцинтиллятор. Энергетическое разрешение реального калориметра определяется как:

$$\frac{\sigma}{E} = \frac{a}{\sqrt{E}} \oplus \frac{b}{E} \oplus c , \qquad (1)$$

где *а* – стохастический член, определяемый статистической флуктуацией числа частиц в ливне; *b* – шумовая компонента фотодетектора и электроники; *c* – постоянная компонента (неоднородности отклика детектора) [1, 2, 3 - 5].

Чтобы измерить энергию частицы с высокой точностью, кристаллы в калориметре должны иметь размеры, позволяющие минимизировать потери энергии электромагнитного ливня. Несоответствие геометрических размеров возникающего электромагнитного ливня и сцинтиллятора приводят к появлению продольных и поперечных потерь энергии ливня, что ухудшает точность измерения энергии.

Кроме того, в сегментированном калориметре всегда существуют потери электромагнитного ливня в светоотражающем материале, которым обернуты кристаллы. Особенно сильные погрешности измерений будут возникать при регистрации заряженных частиц с криволинейными треками, когда калориметр находится в маг-



Рис. 1. Схема экспериментальных установок экспериментов COMET и Mu2e



Рис. 2. Моделирование треков регистрируемых электронов в калориметре эксперимента СОМЕТ

нитном поле, как это имеет место в экспериментах COMET и Mu2e (Рис. 1) [7, 8].

Главная задача калориметра в этих экспериментах – измерение энергии с высоким энергетическим разрешением при регистрации 105 МэВ электрона, позволяющее достоверно выделять полезные



Рис. 3. Потери энергии электромагнитного ливня в ЭМК, расположенного в однородном магнитном поле

события из фона, т.е. отбор события в узком энергетическом диапазоне [7, 8].

Принципиальная особенность этих экспериментов – большие углы падения электронов на торцевую поверхность ячеек калориметра, расположенного в магнитном поле (Рис. 2), что приводит к существенному увеличению стохастической компоненты. Кроме того, в зависимости от угла падения, сцинтилляционные фотоны будут проходить разные расстояния до фотодетектора (Рис. 3). Поглощение фотонов по длине кристалла, будет приводить к тому, что одна и та же энергия электромагнитного ливня будет иметь различную амплитуду сигналов на фотодетекторе, т.е. регистрироваться с ошибкой. Все эти причины будут ухудшать энергетическое разрешение калориметра.

В случае, когда калориметр находится вне магнитного поля, все треки электронов прямые (Рис. 3-а) и стохастическая компонента определяется в основном флуктуацией числа частиц в ливне (1). Оптические перекрестные помехи между соседними по треку кристал-



Рис. 4. Зависимость световыхода по длине кристалла от траектории частицы

лами будут влиять только на пространственное разрешение, но не окажут существенного влияния на энергетическое разрешение.

При наличии магнитного поля углы падения регистрируемых электронов могут быть большими (Рис. 3-b), а электромагнитный ливень будет проходить последовательно через ряд активных и пассивных элементов. Поэтому стохастическая компонента будет определяться флуктуацией числа заряженных частиц, пересекающих активные слои калориметра, потерями электромагнитного ливня в материале светоотражающих покрытий, углом падения электронов и др. Энергетическое разрешение будет определяться следующим образом:

$$\frac{\sigma}{E} = \frac{a(a_N, a_\alpha, a_{L_i}, a_S)}{\sqrt{E}} \oplus \frac{b}{E} \oplus c.$$
(2)

Здесь a_N – стохастическая компонента, обусловленная флуктуацией числа заряженных частиц, пересекающих активные слои калориметра; a_{α} – стохастическая компонента, обусловленная флуктуацией числа заряженных частиц в зависимости от угла падения; a_{L_i} – стохастическая компонента, обусловленная неоднородностью светосбора сцинтилляционных фотонов по длине кристалла и a_s – стохастическая компонента, обусловленная потерями электромагнитного ливня в чередующихся слоях светоотражающих покрытий кристаллов.

Уменьшение потерь электромагнитного ливня и влияния перекрестных оптических помех между соседними кристаллами в таких калориметрах может быть достигнуто за счет применения оптимального типа светоотражающих покрытий кристаллов [3, 9 – 11]. Эти покрытия должны максимально уменьшать потери электромагнитного ливня, иметь минимальную толщину светоотражающего материала S, подавлять оптические перекрестные помехи между кристаллами (Рис. 3). Все это позволит уменьшить флуктуации процессов энерговыделения в сцинтилляторе и неоднородность светосбора по длине кристалла, и как результат улучшит точность измерения энергии в калориметре.

2. Процессы, влияющие на светосбор сцинтилляционных фотонов в кристалле

Отклик ячейки калориметра при прохождении высокоэнергетической частицы зависит, главным образом, от трех факторов: энергии электромагнитного ливня, возникающего в ячейке; эффективности сцинтиллятора и светосбора в ячейке. В свою очередь, следующие факторы влияют на светосбор: собственные потери (оптическое поглощение) в кристалле; потери при отражении света от поверхностей (границ) в кристалла; эффект оптической фокусировки. Как следствие, световыход – отклик, нормированный на выделенную энергию, зависит от расстояния между треком частицы в кристалле и окном фотодетектора. [1, 2, 6, 12].

Неоднородность световыхода по длине кристалла ухудшает точность, с которой регистрируется энергия частицы в калориметре. Это объясняется тем, что амплитуды сигналов с фотодетектора для электронов с одинаковой энергией $E_{e_{-}}$, но проходящих через кристалл на разном расстоянии от фотодетектора (Рис. 4) будут неодинаковыми. Для того чтобы уменьшить неоднородность свето-



Рис. 5. Схема светосбора в ячейках калориметра, собранного из кристаллов LYSO

выхода, необходимо обеспечить равномерность светосбора по всей длине кристалла [2, 3, 9, 11, 13].

При создании сегментированных ЭМК выполнение этого требования является сложной технической задачей, так как кристаллы с высокой плотностью вещества (LYSO, GSO и др.) имеют большое значение показателя преломления. Так, например, показатель преломления кристалла LYSO равен 1.82, поэтому, большая часть эмитированных фотонов попадает в «оптическую ловушку» (Рис. 5) вследствие полного внутреннего отражения от поверхностей кристалла [2, 5]. Из-за несоответствия показателей преломления сцинтиллятора и материала окна фотодетектора, часть фотонов, достигающих фотодетектор, будет отражаться обратно в объем сцинтиллятора (Рис. 5). Оба этих эффекта увеличивают среднюю длину пробега фотонов в кристалле и приводят к потерям света из-за самопоглощения внутри кристалла. Таким образом, в тяжелых кристаллах существуют потери фотонов сцинтилляций, зависящие от положения трека частицы в кристалле относительно фотодетектора.

Уменьшение этих потерь может быть достигнуто за счет изменения светоотражающих свойств поверхностей кристалла. Для этого создается диффузный тип отражения поверхностей кристалла, а именно поверхности полируют мелко-абразивной алмазной крошкой [3, 9, 11] или применяют различные методы травления [9, 14]. Например, при травлении поверхностей кристалла LYSO размером 2×2×10 см³ относительный световыход увеличился с 48% до 88% по сравнению с эталонным кристаллом [9, 14], а при полировке кристалла PWO длиной 25 см мелко-абразивной алмазной крошкой (Ø=15 мкм) относительный световыход увеличился примерно на 26% [11].

Другим подходом, уменьшающим потери света по длине кристалла, является применение специальных светоотражающих покрытий, создающих диффузный тип отражения на поверхности кристалла. В настоящее время существует достаточно большое количество светоотражающих материалов, из которых наилучшими диффузными свойствами обладают TEFLON, MILLIPORE, TYVEK [2, 5, 9, 15 – 17] и краска BICRON 347 [2]. Экспериментальные исследования показали, что хороший результат создания диффузного типа отражения на поверхности кристалла достигается при использовании пленки MILLIPORE [16, 17]. Однако из-за невысокой механической прочности более предпочтительным при сборке сегментированного калориметра оказалось использование покрытия TYVEK, несмотря на 10% потерю света по сравнению с MILLIPORE [16, 17].

Однако все эти материалы имеют недостатки. Например, TEFLON имеет относительно высокий коэффициент пропускания фотонов, что приводит к перекрестным оптическим помехам между кристаллами [15, 18]. Для устранения этой проблемы при обертывании кристаллов обычно используется несколько слоев пленки TEFLON. Материал TYVEK – достаточно толстая пленка с минимальной толщиной не менее 100 мкм [16].

Чтобы разработать методы улучшения светосбора экспериментально измерялись неоднородность световыхода и энергетическое



Рис. 6. Улучшение светосбора за счет применения комбинированного светоотражающего покрытия кристаллов

разрешение по длине кристалла. Также исследовались различные способы обертывания кристаллов (тип и параметры светоотражающих пленок). Все исследования были выполнены на разработанном авторами прецизионном измерительном стенде [19]. Исследовались кристаллы LYSO (2×2×12 см³, активированные 1.5% церия, производства Saint-Gobain [20]), выбранные коллаборацией СОМЕТ для ЭМК. Результаты исследований показали, что улучшение светосбора в кристаллах ЭМК может быть достигнуто за счет применения определенной комбинации светоотражающих материалов. А именно, покрытие должно иметь два типа отражения. Внутренний слой должен иметь диффузный тип отражения, а внешний – зеркальный (Рис. 6-а). Диффузный слой будет изменять угол преломления фотонов, выходящих из кристалла (α_d , Рис. 6-а). Причем, диффузные материалы TEFLON, MILLIPORE и TYVEK имеют высокий коэффициент рассеяния фотонов на большие углы α_d .

На рисунке 6-с показано рассеяние пучка фотонов в кристалле LYSO, обернутого пленкой TEFLON (AF1601) толщиной 120 мкм, а на рисунке 6-b – прохождение этого же пучка в кристалле без покрытия. Как видно из рисунка 6-с, диффузная поверхность, создаваемая пленкой TEFLON, значительно уменьшает число фотонов (Light reflected, Puc. 6-а), попадающих в «оптическую ловушку», т.е. существенно больше фотонов достигнет фотодетектора (Light extracted, Puc. 6-а). На рисунке 6-d показано рассеяние пучка фотонов в кристалле, обернутом пленкой TEFLON и, затем, пленкой ESR (VM2000), имеющей зеркальный тип отражения (Mirror reflection, Puc.6-а). В таком комбинированном (гетерогенном) светоотражающем покрытии второй зеркальный слой, создаваемый ESR пленкой, отражает фотоны, прошедшие через первый диффузный слой, обратно в объем сцинтиллятора, т.е. подавляет перекрестные оптические помехи между кристаллами.

В результате исследований по оптимизации способов обертывания кристаллов LYSO было установлено, что в качестве диффузного светоотражающего слоя для покрытия боковых поверхностей кристалла может быть выбрана пленка TELON (AF1601, толщиной 60 мкм, с коэффициентом отражения 0.98). Для второго (внешнего) слоя может быть выбрана пленка ESR (VM2000), имеющая высокий коэффициент отражения фотонов в видимом диапазоне, аналогичный зеркальному [15, 16].

Чтобы сравнить светосбор по длине, измерения световыхода проводились для кристалла без светоотражающего покрытия (no



Рис. 7. Неоднородность световыхода вдоль длины кристалла для различных типов светоотражающих материалов

wrapping, Puc. 5), кристалла с двумя, четырьмя и шестью слоями TELON (2Teflon, 4Teflon, 6Teflon, Puc. 5). Затем световыход был измерен для комбинированного типа покрытия (2Teflon+ESR, Puc. 7). В этом случае боковые поверхности кристалла сначала покрывали двумя слоями TELON, а затем сверху еще одним слоем пленки ESR (Puc. 6-а). Дополнительно был измерен световыход для случая, когда при комбинированном типе обертывания торец кристалла был покрыт одним слоем пленки ESR (2Teflon+ESR+ESR(end), Puc. 7).

На рисунке 7 представлены результаты исследования влияния различных отражателей на общие потери светосбора. Было установлено, что для получения однородности световыхода по длине кристалла количество слоев пленки TFLON должно быть не менее четырех (Рис. 7). Однако в этом случае общая толщина покрытия будет большой (~ 400 мкм), что приведет к значительному поглощению электромагнитного ливня.

Наилучшие результаты были получены при комбинированном типе обертывания (2Teflon + ESR, Рис. 7). В этом случае при общей толщине покрытия ~ 200 мкм получена хорошая неоднородность световыхода ~ 0.23 ± 0.004 %/см⁻¹ и минимальные потери фотонов.



Рис. 8. Экспериментальные результаты влияния различных светоотражающих покрытий на энергетическое разрешение

Кроме того, данный тип покрытия будет подавлять оптические перекрестные помехи и хорошо пропускать электромагнитный ливень.

Также установлено, что комбинация гетерогенного покрытия боковых граней кристалла с зеркальным отражателем на торцевой поверхности кристалла, (2Teflon+ESR+ESR(end)), (Рис. 7-а), изменяет угловое распределение фотонов (эффект оптической фокусировки) тем самым увеличит однородность световыхода. Неоднородность световыхода в этом случае равна ~ 0.064 ± 0.0003 %/см⁻¹. Кроме того, световыход оказался максимальным по величине (см. Табл. 1).

На рисунке 8 представлены результаты исследования влияния различных светоотражающих покрытий на энергетическое разрешение кристалла в зависимости от расстояния источника излучения ²²Na (E_{γ} =1274.5 кэВ) до фотодетектора. Установлено, что наилучшее энергетическое разрешение в кристалле достигается при использовании гетерогенных отражающих покрытий (Рис. 8-b). Среднее значение энергетического разрешения по длине кристалла (FWHM) равно 8.6 % для 2Teflon+ESR и 8.5 % для 2Teflon+ESR+ESR(end). Также получена хорошая линейность распределения энергетического разрешения по длине кристалла (~ 0.015± 0.0001 %/см⁻¹ для обоих вариантов).



Рис. 9. Спектр и энергетическое разрешение кристалла LYSO для варианта 2Teflon+ESR+ESR(end), полученный на источнике $^{60}\mathrm{Co}$

При использовании других отражателей энергетическое разрешение и линейность его распределения по длине кристалла ухудшается. Например, для варианта 2Teflon (Puc. 8-а) среднее значение энергетического разрешения по длине кристалла равна 11.8 % (т.е. в 1.4 раза хуже, чем для 2Teflon+ESR), а его линейность составила 0.09 %/см⁻¹, (примерно в 6 раз хуже). Для варианта 4Teflon и 6Teflon среднее значение энергетического разрешения по длине кристалла составили 11.15 % и 10.16 %, соответственно, а его линейность для этих вариантов – 0.084 %/см⁻¹ и 0.06 %/см⁻¹, соответственно, т.е. примерно в 5 раз хуже, чем для 2Teflon+ESR.

На рисунке 9 представлен результат экспериментального измерения энергетического разрешения кристалла LYSO для варианта обертывания 2Teflon+ESR+ESR(end), полученный с источником $^{60}\mathrm{Co}~(E_1$ =1173.2 кэB; E_2 =1332.5 кэB), на расстоянии L=60 мм от фотодетектора и высоте 1 мм от поверхности кристалла. Полученное разрешение составило 8.4 % для энергии 1173.2 кэB и 8.0 % для энергии 1332.5 кэB, что подтверждает оптимальность предложенного типа покрытия.

Cı	пособы обертки кристалла	Неоднородность световыхода [%/см-1]	Относительный световыход (L= 60 мм), [%]	Энергетическое разрешение (L= 60 мм), [%]
1	no wrapping	0.78 ± 0.01	60	11.37
2	2Teflon	0.4 ± 0.06	74	11.44
3	4Teflon	0.36 ± 0.05	79	10.59
4	6Teflon	0.27 ± 0.004	83	9.5
5	2Teflon+ESR	0.23±0.004	90	8.62
6	2Teflon + ESR + ESR(end)	0.064±0.003	100	8.56

Таблица 1. Неоднородность световыхода, относительный световыход и энергетическое разрешение для различных светоотражающих покрытий кристалла

В таблице 1 приведены значения неоднородности световыхода, относительного световыхода и энергетического разрешения на расстоянии 60 мм от фотодетектора для исследованных светоотражающих покрытий. Полученные результаты согласуется с результатами, приведенными в [2, 6, 16, 17].

3. Угловое распределение энергии, выделенной в сегментированном калориметре

Неоднородность световыхода по длине кристалла будет приводить к погрешности измерения выделенной в калориметре энергии, особенно при регистрации частиц, имеющих криволинейные треки (как это имеет место в экспериментах СОМЕТ и Mu2e).

Эта проблема связана с угловым распределением энергии в калориметре, когда при одинаковых геометрических размерах ливня, т.е. при одинаковой выделенной энергии, фотоны сцинтилляций будут проходить различное расстояние до фотодетектора (APD) в зависимости от угла между осями ливня и кристалла ($L_{\alpha_0} < L_{\alpha_1} < L_{\alpha_2}$, Рис. 10-а). Поэтому, APD сигналы для энергии, выделенной в кристаллах на различной длине L_{α_i} (Рис. 10-а), будут иметь различную амплитуду U_{α_i} в зависимости от угла падения пучка α_i , (Рис. 10-b). Поэтому измеренное значение энергии будет


Рис. 10. Угловое распеределение энергии, выделенной в сегметнированном калориметре

иметь ошибку $E_e = (U_{\alpha_i} \pm \Delta U) \cdot k_{kalibr}$, где $k_{kalibr} = \frac{E_k}{U_k} -$ коэффициент энергетической калибровки калориметра.

Следовательно, в сегментированном ЭМК выделенная энергия будет измеряться с ошибкой, определяемой углом между осью кристалла и направлением развития электромагнитного ливня. Так, например, в тестовых измерениях прототипа калориметра эксперимента СОМЕТ (матрица 9×9 кристаллов LYSO), проведенных в 2014 г. на электронном пучке ускорителя Tohoku (Япония), значения энергий, зарегистрированных прототипом в случае 105 МэВ электронного пучка, для углов α =90° и α =20° отличаются примерно на 6 % [21].

Таким образом, при обработке результатов измерения энергии, выделенной в калориметре, необходимо учитывать угловую ошибку измерения энергии, а именно – реальные положения треков электронов в кристаллах.

С этой целью на базе прецизионного стенда [19] было выполнено экспериментальное изучение угловой ошибки измерения энергии в кристаллах на прототипе калориметра (прототип Дубна) с исполь-



Рис. 11. а) ошибка измерения энергии; b) угловое распределение выделенной энергии, полученное на прототипе Дубна

зованием источника ⁶⁰Со ($E_1 = 1173.2$ кэВ; $E_2 = 1332.5$ кэВ) (Рис. 11) [22]. Прототип Дубна был выполнен в виде матрицы 3×3 кристаллов LYSO (2×2×15 см³), обернутых двойным слоем TEFLON (AF1601, толщина 60 мкм) и помещенных в майларовый модуль. Считывание сигналов с кристаллов осуществлялось с использованием лавинных фотодиодов (APD S8664-1010, Hamamatsu).

Из полученных результатов (Рис. 11-а) видно, что ошибка измерения выделенной энергии на космических мюонах для угла 20 градусов составила примерно 6,7 %, что хорошо согласуется с результатами, полученными для прототипа калориметра эксперимента COMET во время тестовых измерений (Tohoku, 2014) [21]. Отметим, что значение ошибки измерения энергии практически не зависит от типа регистрируемой частицы, а зависит только от однородности световыхода в кристалле и углового энергетического распределения в прототипе.

Работа выполнена при поддержке гранта БРФФИ-ОИЯИ №2-1101-2010.2016

Заключение

Были исследованы процессы, влияющие на светосбор сцинтилляционных фотонов в кристалле: самопоглощение света в сцинтилляторе; потери при отражении света от поверхностей кристалла, в зависимости от положения трека в кристалле. Разработан способ уменьшения неоднородности световыхода, посредством применения гетерогенных светоотражающих покрытий кристаллов. Экспериментально установлено, что наилучшие результаты могут быть получены при комбинированном типе покрытия: на боковые поверхности кристалла нанесено гетерогенное покрытие – два слоя диффузного отражателя TELON и внешний слой зеркальной пленки ESR, торцевая поверхность кристалла покрывается материалом с зеркальным типом отражения (пленка ESR, Рис. 8-b).

Выполнено экспериментальное изучение угловой ошибки измерения энергии (Рис. 9) в кристаллах на прототипе Дубна с использованием источника ⁶⁰Со. Установлено, что ошибка измерения выделенной энергии на космических мюонах для угла 20 градусов составляет ~ 6,7 %.

Литература

- C. Fabjan, F. Gianotti. Calorimetry for particle physics. *Rev.* Mod. Phys. 75 (2003) 1243-1286.
- 2. M.N. Khachaturian. Electromagnetic calorimeters based on scintillating crystals. *Phys. Part. Nucl.* **34** (2003) 684-708.
- 3. C.W. Fabjan. Optimization of the light extraction from heavy inorganic scintillators. Dissertation, Technidchen Universitat, Wien 2008.
- Hans-Christian Schultz-Coulon. The Physics of Particle Detectors. Lecture & Journal Club (SS 2011). Kirchhoff-Institut für Physik. http://www.kip.uni-heidelberg.de/~coulon/Lectures/ Detectors/Free_PDFs/Lecture9.pdf
- 5. C.W. Fabjan. Photonic Crystals: Enhancing the Light Output of Scintillation Based Detectors. Dissertation, Technidchen Universsitat, Wien 2012.
- Yao Xiaoguang, A study of light collection efficiency in scintillation detectors. Nucl. Instrum. Methods Phys.Res.228 (1984) 101-104.

- 7. COMET Collaboration, Conceptual Design Report for Experimental Search for Lepton Flavor Violating μ ·N \rightarrow e-N Conversion at Sensitivity of 10⁻¹⁶ with a Slow-Extracted Bunched Proton Beam (COMET), 2009, (KEK Report 2009-10)
- 8. L. Bartoszek, et al., Mu2e Technical Design Report //arxiv: 1501.05241.
- 9. U. Heinrichs, A. Blume, et.al. Statistical studies on the light output and energy resolution of small LSO single crystals with different surface treatments combined with various reflector materials. *Nucl. Instrum. Methods . Phys. Res.* A 486 (2002) 60–66.
- 10. I. Vilardi, et.al. Optimization of the effective light attenuation length of YAP:Ce and LYSO:Ce crystals for a novel geometrical PET concept. *Nucl. Instrum. Methods*. *Phys. Res.* A 564 (2006) 506–514.
- 11. E. Auffray, G.J. Davies, et.al. Development of a Uniformisation Procedure for the $PbW0_4$ Crystals of the CMS Electromagnetic Calorimeter. CMS CERN NOTE 2001/004 January 26, 2001.
- D. Bonifacio, et.al. A Time Efficient Optical Model for GATE Simulation of a LYSO Scintillation Matrix Used in PET Applications. IEEE Transactions on nuclear science, Vol. 57, no. 5, October 2010.
- C. Levin, F. Habte, A. Foudray. Methods to extract more light from minute scintillation crystals used in an ultra-high resolution positron emission tomography detector. *Nucl. Instrum. Methods*. *Phys. Res.* A 527 (2004) 35–40.
- C. Pepin, et.al. Properties of LYSO and recent LSO scintillators for phoswich PET detectors. *IEEE Trans. Nucl. Sci.*, **51**, No. 3, (2004) pp. 789-795.
- S. Scheu, H. Kaspar, P. Robmann, A. van der Schaaf, P. Truol. Studies on wrapping materials and light collection geometries in plastic scintillators. *Nucl. Instrum. Methods*. *Phys. Res.* A 567 (2006) 345–349.
- 16. M. Janectk Reflectivity Spectra for Commonly Used Reflectors. *IEEE Trans. Nucl. Sci*, **59**, No. 3, (2012) pp. 490-497.

- 17. S.P. Stoll. An Investigation of Reflective Properties of Tyvek Papers and Tetratex PTFE Film. PHENIX Note #245, Physics Department Brookhaven National Laboratory, July 1, 1996.
- M. Yang et.al, Optical properties of Teflon AF amorphous fluoropolymers. J. Micro/Nanolith, MOEMS 7(3), 033010 (Jul-Sep 2008).
- 19. V. Kalinnikov, E. Velicheva. Investigation of LYSO and GSO crystals and simulation of the calorimeter for COMET experiment. *Phys.Part.Nucl.Lett.* **11** (2014) 3, 259-268.
- 20. www.detectore.saint-gobain.com.
- 21. Kou Oishi, 14th COMET International CM, September 22-26, 2014, Tbilisi, Georgia, 140926_COMET_CM14_KouOishi.
- 22. V. Kalinnikov, E. Velicheva. Research of the ECAL calorimeter used in the COMET experiment. *Funct. Mater.*, **22** (2014), 1, 116-125.

К ВОПРОСУ О РАЗЛИЧНЫХ КОНЦЕПЦИЯХ ОЦЕНКИ КАЧЕСТВА РЕЗУЛЬТАТОВ ИЗМЕРЕНИЯ СВЕТОВОГО ВЫХОДА СЦИНТИЛЛЯТОРОВ

Б.В. Гринев, Н.Р. Гурджян, О.В. Зеленская, В.Р. Любинский, Л.И. Мицай, Н.И. Молчанова, В.А. Тарасов

Институт Сцинтилляционных Материалов, НТК «Институт Монокристаллов», Национальная Академия Наук Украины, пр. Науки, 60, Харьков, 61072, Украина

Аннотация

На примере измерения технического светового выхода различных цилиндрических сцинтилляторов – NaI(Tl), CsI(Tl), CWO, BGO, *n*-терфенила, антрацена, стильбена – и длинномерного стрипа на основе полистирола (ПС-стрип), рассмотрены две концепции оценки качества результатов измерений: традиционная – на основе расчета погрешности и современная – на основе расчета неопределенности измерений. Изучена возможность применения данных подходов для сцинтилляторов с техническим световым выходом в интервале от 50 фотонов/МэВ до 35000 фотонов/МэВ. Дан сравнительный анализ этих подходов и сделаны выводы.

Введение

В Институте сцинтилляционных материалов Национальной академии наук Украины (ИСМА НАН Украины) разрабатываются и производятся различные сцинтилляторы, которые используются для решения научных и технических задач во многих странах. Технический световой выход сцинтиллятора характеризует количество света, прошедшего через его выходное окно, и является важным эксплуатационным параметром поставляемой продукции. Введение в Украину европейских стандартов предъявляет повышенные требования к качеству измерения данного параметра.

В настоящее время оценивание качества измерений различных величин производится с использованием современной «концепции неопределенности» в соответствии с международной рекомендацией GUM [1]. Однако многие нормативные документы по-прежнему ориентированы на использование традиционной тенденции оценки качества, основанной на применении «концепции погрешности».

Целью любого измерения является получение оценки истинного значения измеряемой величины. Понятие погрешности измерений как разности между результатом измерений и истинным (действительным) значением измеряемой величины используется для характеристики качества измерения [2]. Однако истинное значение измеряемой величины всегда остается неизвестным. Невозможно точно определить случайную составляющую погрешности, зависящую от числа измерений. Неизвестно точное значение поправки, определяющей неисключенную систематическую составляющую, из-за наличия неизвестных влияющих факторов. Сочетание вышеуказанных причин и приводит к возникновению неопределенности измерения (рис. 1).

В GUM отсутствует противопоставление погрешности и неопределенности и предлагается разграничить понятие погрешности как модели измерения, приближенной к действительности, и неопределенности измерения как меры возможной неточности результата измерения [4].

Традиционно технический световой выход сцинтилляторов измерялся, в соответствии со стандартом [5], в условных единицах. Качество его измерения оценивалось величиной погрешности. Однако после гармонизации международного стандарта IEC 62372 [6] в ДСТУ IEC 62372:2009 [7] технический световой выход сцинтилляторов стал измеряться в энергетических единицах – фотонах/МэВ (фот/МэВ), характеризующих количество фотонов сцинтилляции,



Рис. 1. Графическая иллюстрация понятий «погрешность» и «неопределенность» [3]

прошедших через выходное окно сцинтиллятора при поглощении им энергии возбуждения равной 1 МэВ. Для оценки качества результата измерений стала использоваться неопределённость результата измерений.

<u>Целью данной работы</u> является оценивание качества результатов измерения технического светового выхода сцинтилляторов при использовании различных концепций оценки качества.

Изложение основного материала

1. Постановка измерительной задачи

Измерительная задача заключалась в определении технического светового выхода исследуемых сцинтилляторов. Для решения поставленной задачи использовался относительный метод измерения, основанный на сравнении характеристик исследуемых образцов сцинтилляторов с известными характеристиками рабочих образцов.

Тип сцинтиллятора	Размер рабочего образца, мм	Размер исследуемого образца, мм			
CsI(Tl)	$\varnothing40{ imes}40$	Ø40×40			
NaI(Tl)	$\varnothing40{ imes}40$	$\varnothing40{\times}40$			
CWO	$\varnothing40{\times}40$	$\varnothing40{\times}80$			
BGO	Ø16×16	$\varnothing 16{ imes}40$			
п-терфенил	$\varnothing40{ imes}16$	$\varnothing40{\times}16$			
Антрацен	$\varnothing40{ imes}20$	$\varnothing40{\times}20$			
Стильбен	$\varnothing40{\times}20$	$\varnothing40 \times 20$			
ПС-стрип	$26{\times}10{\times}300$	$26{\times}10{\times}300$			

Таблица 1. Перечень исследуемых сцинтилляторов

2. Описание объектов измерения

Для оценивания погрешности и неопределенности измерений технического светового выхода были выбраны различные сцинтилляторы:

- неорганические на основе монокристаллов йодидов цезия и натрия, активированных таллием – CsI(Tl), NaI(Tl) и на основе монокристаллов вольфрамата кадмия – CWO и германата висмута – BGO;
- органические на основе монокристаллов *n*-терфенила, антрацена и стильбена, а также пластмассовый стрип на основе полистирола – ПС-стрип.

Все образцы, кроме ПС-стрипа, имели цилиндрическую форму. Образцы ПС-стрипа — длинномерные призмы с канавкой для спектросмещающего волокна [8]. Использовались рабочие образцы с диаметром, равным высоте, и испытуемые образцы с диаметром выходного окна, равным диаметру выходного окна рабочего образца.

Цилиндрические образцы, используемые для регистрации γ- излучения, кроме СWO и BGO, были упакованы в контейнеры из алюминия с отражателем из Tetratex и стеклянным выходным



Рис. 2. Внешний вид исследуемых сцинтилляторов: *а*-неорганические; б-органические

окном. Образцы CWO и BGO упаковывались только в Tetratex. Перечень исследуемых сцинтилляторов с указанием размеров приведен в табл. 1.

Входное окно образцов *n*-терфенила и антрацена, используемых для регистрации конверсионных электронов, было закрыто алюминизированной пленкой (майларом). Поверхность стрипа была покрыта отражателем TiO₂. Внешний вид исследуемых сцинтилляторов представлен на рис. 2.

3. Аппаратура и проведение измерений

Измерения технического светового выхода цилиндрических сцинтилляторов проводились в соответствии со стандартом [7] в импульсном режиме на стандартном спектрометрическом устройстве (СУ). В качестве фотоприемника использовался фотоэлектронный умножитель (ФЭУ) типа R1307. Для возбуждения сцинтилляторов использовались источники гамма-излучения ¹³⁷Cs (E_{γ} =662 кэВ) и конверсионных электронов (КЭ) ¹³⁷Cs ($E_{K\Im}$ =624 кэВ). Блок-схема СУ приведена на рис. 3.

Проводились многократные измерения, в условиях повторяемости, спектров амплитуд импульсов от рабочего и испытуемого образцов в соответствии со стандартом [7]. Вид амплитудных спектров различных сцинтилляторов представлен на рис. 4.



Рис. 3. Блок-схема СУ

Технический световой выход ПС-стрипа измерялся в токовом режиме. Использовался ФЭУ типа R980 и источник бета-излучения ⁹⁰Sr+⁹⁰Y. Методика измерения описана в статье [8]. Общий вид измерительной установки представлен на рис. 5.

4. Математическая модель

Технический световой выход цилиндрических сцинтилляторов (C_{ph}) при работе в импульсном режиме определялся по формуле (18) стандарта [7]:

$$C_{ph} = \frac{C_{ph0} \times (V_a - V_0)}{(V_{et} - V_0)}$$
(1)

где C_{ph} – технический световой выход испытуемого цилиндрического образца, в фот/МэВ; C_{ph0} – технический световой выход рабочего образца, в фот/МэВ; V_o – значение начальной точки характеристики преобразования СУ, в номерах каналов шкалы анализатора



Рис. 4. Амплитудные спектры различных типов сцинтилляторов



Рис. 5. Установка для измерения светового выхода сцинтилляционных

импульсов; V_{et} и V_a – значения амплитуд импульсов для рабочего и испытуемого образцов соответственно, отвечающие, в зависимости от вида спектра, положениям, в номерах каналов шкалы анализатора импульсов:

- максимумов пиков полного поглощения,
- максимумов пиков от КЭ,
- краев комптоновского распределения (К-краев).

Технический световой выход стрипа (C_{phe}) при работе в токовом режиме определялся по формуле (1) стандарта [9]:

$$C_{phe} = \frac{C_{phe0} \times (I - I_{bg})}{(I_0 - I_{bg})},$$
(2)

где C_{phe} – технический световой выход исследуемого образца стрипа, в фотоэлектронах/МэВ (фэ/МэВ) [8]; C_{phe0} – технический световой выход рабочего образца стрипа, в фэ/МэВ; I – значение анодного тока ФЭУ от исследуемого образца, в делениях выбранной шкалы микроамперметра (МА); I_0 – значение анодного тока ФЭУ от рабочего образца, в делениях той же шкалы МА; I_{bg} – фоновое значение анодного тока ФЭУ, в делениях той же шкалы МА.

Заменив в выражениях (1) и (2) отношение амплитуд импульсов либо токов множителем f, их можно переписать в виде:

$$C_{ph} = C_{ph0} \times f , \qquad (3)$$

$$C_{phe} = C_{phe0} \times f , \qquad (4)$$

$$f = \frac{V_a - V_0}{V_{et} - V_0} , \qquad (5)$$

$$f = \frac{I - I_{bg}}{I_0 - I_{bg}}.$$
 (6)

Полученные уравнения (3) и (4) представляют собой линеаризованную математическую модель процесса передачи единицы технического светового выхода от рабочих к испытуемым образцам.

5. Метрологическая модель

5.1 Анализ источников погрешности и неопределенности результата измерения технического светового выхода

Наибольшее влияние на результат измерени
й C_{ph} и C_{phe} оказывают следующие факторы:

 статистический разброс результатов многократных измерений отношения амплитуд импульсов либо токов, *f*;

- неточное значение светового выхода C_{ph0} либо C_{phe0} приписанное рабочему образцу
- ограниченная чувствительность шкалы анализирующего прибора *f_{np}*, влияющая на значения отношений амплитуд импульсов либо токов *f*.

Влияние дополнительных факторов, таких как методическая погрешность, температура окружающего воздуха и непрерывная работа СУ, а также способы их минимизации были подробно рассмотрены в предыдущих работах [10-12].

Статистический разброс результатов измерений отношения амплитуд импульсов либо токов f определял случайную составляющую погрешности измерений и неопределенность измерений C_{ph} либо C_{phe} по типу A, обусловленную источниками, имеющими случайный характер.

Вклад случайной составляющей погрешности в результат измерения C_{ph} либо C_{phe} оценивался путем определения среднеквадратического отклонения (СКО) среднего арифметического значения отношения амплитуд, либо токов, $S(\bar{f})$ и светового выхода – $S(\bar{C}_{ph})$ либо $S(\bar{C}_{phe})$. Вклад стандартной неопределенности результата измерения по типу А, – $u_A(\bar{f})$ и $u_A(\bar{C}_{ph})$ либо $u_A(\bar{C}_{phe})$, в соответствии с рис. 2 Руководства [4], оценивался так же, как вклад $S(\bar{f})$ и $S(\bar{C}_{ph})$ либо $S(\bar{C}_{phe})$.

Неточное значение технического светового выхода рабочего образца и ограниченная чувствительность шкалы анализирующего прибора определяли вклад неисключенной систематической составляющей погрешности (НСП) в измерение C_{ph} либо C_{phe} и неопределенность измерений C_{ph} либо C_{phe} по типу В, обусловленную источниками, имеющими систематический характер.

Оценкой НСП светового выхода рабочего образца C_{ph0} либо C_{phe0} служило известное постоянное значение его суммарной погрешности ΔC_{ph0} либо ΔC_{phe0} . Оценкой неопределенности по типу В – значения Δu_{Bph0} и Δu_{Bphe0} , вычисленные в соответствии с Руководством [4].

Ограниченная чувствительность шкалы анализирующего прибора f_{np} характеризует приборную погрешность измерений C_{ph} либо C_{phe} . Она связана с предельными допускаемыми погрешностями отсчетов положений пиков по шкале анализатора либо величин токов по шкале МА. Она же обуславливает вклад НСП и неопределенности по типу В, в результат измерения C_{ph} либо C_{phe} за счет неточности отсчетов.

Оценкой НСП, связанной с ограниченной чувствительностью шкалы анализирующего прибора f_{np} служила величина $\theta(f_{np})$, включающая вклады предельных допускаемых погрешностей отсчетов θ_{Va} , θ_{Vet} , θ_{V0} либо θ_I , θ_{I0} , θ_{Ibg} , определения V_a , V_{et} , V_0 либо I, I_0 , I_{bg} в результат измерения C_{ph} либо C_{phe} .

Оценкой неопределенности по типу В служила величина $u_B(f_{np})$, включающая вклады стандартных неопределенностей u_{BVa} , u_{BVet} , u_{BV0} определения V_a , V_{et} , V_0 , либо вклады стандартных неопределенностей u_{BI} , u_{BI0} , u_{BIbg} определения I, I_0 , I_{bg} , в результат измерения C_{ph} либо C_{phe} .

Структура метрологической модели измерения погрешности и неопределенности технического светового выхода сцинтилляторов, учитывающая рассматриваемые факторы, представлена на рис. 6.

5.2 Процедуры оценивания погрешности и вычисления неопределенности измерения технического светового выхода

5.2.1 Оценивание погрешности измерения

По результатам проведения n измерений для сцинтилляторов были рассчитаны отношения амплитуд либо токов и их средние значения \overline{f} .

По формулам (3) и (4) рассчитывались значения технического светового выхода C_{ph} либо C_{phe} исследуемых сцинтилляторов.

Оценка погрешности результатов измерения C_{ph} либо C_{phe} проводилась в соответствии со стандартом [13] с учетом постоянства множителя C_{ph0} либо C_{phe0} для каждого типа сцинтилляторов. При



Рис. 6.

этом величина результата измерения C_{ph} либ
о C_{phe} могла рассматриваться как результат прямых многократных измерений.

Предполагался нормальный закон распределения с доверительной вероятностью, равной РД = 0,95.

Выражение для СКО, в долях, случайной погрешности измерения значения \overline{f} [13], имеет вид:

$$S(\bar{f}) = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^{n} (f_i - \bar{f})^2}{n(n-1)}},$$
(7)

где $f_i - i$ -е отношение амплитуд импульсов либо токов от испытуемого и рабочего образцов; \overline{f} – среднее значение отношения амплитуд либо токов; n – число измерений.

Абсолютное значение СКО случайной погрешности измерения технического светового выхода в импульсном режиме $S(\bar{C}_{ph})$, в фот/МэВ, исходя из формулы (3) настоящей работы, будет составлять:

$$S(\overline{C}_{ph}) = S(\overline{f}) \times C_{ph0} .$$
(8)

Относительное значение СКО случайной погрешности C_{ph} , $\tilde{S}(\bar{C}_{ph})$, в процентах, определялось по формуле:

$$\tilde{S}(\bar{C}_{ph}) = \frac{S(\bar{C}_{ph})}{\bar{C}_{ph}} \times 100 \quad . \tag{9}$$

Доверительные границы, $\tilde{\epsilon}(\bar{C}_{ph})$, случайной погрешности измерения C_{ph} , в процентах, определялись в соответствии со стандартом [13] из выражения:

$$\tilde{\varepsilon}_{0.95}(\bar{C}_{ph}) = t_{0.95(n-1)}\tilde{S}(\bar{C}_{ph}),$$
(10)

где $t_{0.95(n-1)}$ – коэффициент Стьюдента для уровня вероятности 0,95 и числа степеней свободы, равного n-1.

Доверительные границы НСП, связанной с ограниченной чувствительностью шкалы анализирующего прибора – $\theta(f_{\rm np})$, в общем виде рассчитываются, в соответствии со стандартом [13], по формуле:

$$\theta\left(f_{np}\right) = k_{\sqrt{\sum_{i=1}^{n} \left[w\left(x_{i}\right)\theta\left(x_{i}\right)\right]^{2}}} = k_{\sqrt{\sum_{i=1}^{n} \left[\frac{\partial f}{\partial x_{i}}\theta\left(x_{i}\right)\right]^{2}}, \quad (11)$$

где $x_i - i$ -й фактор, влияющий на приборную чувствительность (V_a , V_{et} , V_0 , либо I, I_0 , I_{bg}); $w_i = \frac{\partial f}{\partial x_i}$ – коэффициенты влияния погрешности i-го фактора на ограничение приборной чувствительности; $\theta(x_i)$ – предельные погрешности влияющих факторов; k – коэффициент, определяющий доверительные границы НСП $\theta(f_{np})$ и равный 1,1 для нормального закона распределения с РД = 0,95.

Для вычисления относительного значения $\hat{\theta}(f_{np})$ при работе в импульсном режиме выражение (5) предварительно логарифмировалось:

$$Lnf = Ln (V_a - V_o) - Ln (V_{et} - V_0).$$
(12)

Тогда выражение (9) для НСП приборной чувствительности можно записать в виде:

$$\tilde{\theta} (f_{np}) = \mathbf{1}, \mathbf{1} \sqrt{ \begin{bmatrix} \frac{\partial Lnf}{\partial V_a} \end{bmatrix}^2 \cdot \theta_{Va}^2 + \begin{bmatrix} \frac{\partial Lnf}{\partial V_{et}} \end{bmatrix}^2 \cdot \theta_{Vet}^2} \times 100. \quad (13)$$
$$+ \begin{bmatrix} \frac{\partial Lnf}{\partial V_0} \end{bmatrix}^2 \cdot \theta_{V0}^2$$

Коэффициенты влияния погрешностей отсчетов по шкале анализирующего прибора $\frac{\partial Lnf}{\partial V_a}$, $\frac{\partial Lnf}{\partial V_{et}}$ и $\frac{\partial Lnf}{\partial V_0}$ на ограниченность приборной чувствительности определялись путем вычисления частных производных функции Lnf по каждому влияющему фактору:

$$w_{Va} = \frac{\partial Lnf}{\partial V_a} = \frac{1}{V_a - V_0}; \qquad (14)$$

$$w_{Vet} = \frac{\partial Lnf}{\partial V_{et}} = \frac{1}{V_{et} - V_0}; \qquad (15)$$

$$w_{V0} = \frac{\partial Lnf}{\partial V_0} = \frac{-1}{V_a - V_0} + \frac{1}{V_{et} - V_0}.$$
 (16)

После приведения выражения (16) к общему знаменателю и замены в выражениях (14-16) всех знаков «минус» на знаки «плюс», в соответствии с законом накопления частных погрешностей, выражение (13) принимало вид:

$$\tilde{\theta} (f_{np}) = \mathbf{1}, \mathbf{1} \sqrt{ \begin{bmatrix} \left(\frac{\theta_{Va}}{V_a + V_0} \right)^2 + \left[\frac{\theta_{Vet}}{V_{et} + V_0} \right]^2 + \\ + \left[\frac{V_{et} + V_a + 2 V_0}{V_{et} + V_0} \right]^2 \times \left[\frac{\theta_{V0}}{V_a + V_0} \right]^2} \times 100.$$
(17)

Для вычисления $\tilde{\theta}(f_{np})$ при работе в токовом режиме проводились аналогичные расчеты, и выражение (13) принимало вид:

$$\tilde{\theta} \left(f_{np} \right) = \mathbf{1}, \mathbf{1} \left\{ \begin{vmatrix} \frac{\theta_I}{I + I_{bg}} \end{vmatrix}^2 + \left[\frac{\theta_{I0}}{I_0 + I_{bg}} \right]^2 + \left[\frac{\theta_{I0}}{I_0 + I_{bg}} \right]^2 + \left[\frac{I_0 + I + 2 I_{bg}}{I_0 + I_{bg}} \right]^2 \times \left[\frac{\theta_{Ibg}}{I + I_{bg}} \right]^2 \right\} \times 100.$$
(18)

Доверительные границы суммарной НСП результата измерений светового выхода – Θ P(Cph) оценивались путем построения композиции вкладов в соответствии со стандартом [13] по формуле:

$$\tilde{\Theta}(C_{ph}) = k \sqrt{\sum_{i=1}^{n} \tilde{\theta}_{i}} = 1, 1 \sqrt{\left[\tilde{\Delta}C_{ph0}\right]^{2} + \left[\tilde{\theta}(f_{np})\right]^{2}} .$$
(19)

Доверительные границы относительной погрешности, в процентах, результата измерения технического светового выхода сцинтилляторов, $\tilde{\Delta} \bar{C}_{ph}$, рассчитывались в соответствии с методикой, описанной в отчете [14] по формуле (2.2):

$$\tilde{\Delta}C_{ph} = \sqrt{\left[\tilde{\varepsilon}(\bar{C}_{ph})\right]^2 + \left[\tilde{\Theta}(C_{ph})\right]^2} .$$
(20)

Доверительные границы абсолютной погрешности, в фот/МэВ, результата измерений технического светового выхода сцинтилляторов, ΔC_{ph} , определялись аналогично выражению (7):

$$\Delta(C_{ph}) = \frac{\dot{\Delta}(C_{ph})}{100} \times \bar{C}_{ph} . \qquad (21)$$

5.2.2 Вычисление неопределенности измерений

Неопределенность результатов измерений технического светового выхода сцинтилляторов вычислялась в соответствии с Руководством [4] аналогично оценкам погрешности.

Стандартная неопределенность типа A, в долях, измерения среднего значения отношения амплитуд импульсов либо токов, $u_{\rm A}(\bar{f})$, определялась в предположении о нормальном законе распределения с уровнем доверия ${\rm P_{g}}=0,95$ из выражения, аналогичного выражению (7), в соответствии с формулой (5) Руководства [4]:

$$u_{A}(\bar{f}) = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^{n} (f_{i} - \bar{f})^{2}}{n(n-1)}} .$$
(22)

Стандартная неопределенность типа А, в фот/МэВ, измерения технического светового выхода сцинтилляторов определялась из выражения, аналогичного выражению (8):

$$u_A(C_{ph}) = u_A(\overline{f}) \times C_{ph0}.$$
⁽²³⁾

Относительная стандартная неопределенность типа A, в процентах, измерения светового выхода определялась по формуле, аналогичной формуле (9):

$$\tilde{u}_A(\bar{C}_{ph}) = \frac{u_A(\bar{C}_{ph})}{\bar{C}_{ph}} \times 100.$$
(24)

Выражение для расчета относительной суммарной стандартной неопределенности результата измерения технического светового выхода, в процентах, $\tilde{u}_c(C_{ph})$ аналогично выражению (20) данной работы:

$$\tilde{u}_{C}(C_{ph}) = \sqrt{\sum_{i=1}^{n} \tilde{u}_{i}^{2}} = \sqrt{\left[\tilde{u}_{A}(C_{ph})\right]^{2} + \left[\tilde{u}_{B}(C_{ph})\right]^{2}}, \quad (25)$$

где $\tilde{u}_B(C_{ph})$ – суммарная стандартная неопределенность типа В результата измерения технического светового выхода.

Значение $\tilde{u}_{B}(C_{ph})$ определялось по типу В согласно выражению, аналогичному выражению (19) данной работы:

$$\tilde{u}_{B}(C_{ph}) = \sqrt{\sum_{i=1}^{n} \tilde{u}_{Bi}^{2}} = \sqrt{\left[\tilde{\Delta} u_{Bph0}\right]^{2} + \left[\tilde{u}_{B}(f_{np})\right]^{2}} , \qquad (26)$$

где $\tilde{\Delta}u_{Bph0}$ — суммарная неопределенность типа В значения технического светового выхода рабочего образца; $\tilde{u}_B(f_{np})$ — приборная неопределенность, вычисленная по типу В.

Величина Δu_{Bph0} вычислялась исходя из величины суммарной погрешности определения технического светового выхода рабочего образца $\tilde{\Delta}C_{ph0}$, в предположении равномерного распределения погрешности на интервале $\pm \tilde{\Delta}C_{ph0}$ [15]:

$$\tilde{\Delta}u_{Bph0} = \frac{\tilde{\Delta}C_{ph0}}{\sqrt{3}}.$$
(27)

Значение $\tilde{u}_{B}(f_{np})$ рассчитывалось, согласно Руководству [4], по формуле, аналогичной формуле (13) настоящей работы:

$$\tilde{u}_B(f_{np}) = \sqrt{\sum_{i=1}^n \left[c(x_i) u_B(x_i) \right]^2} = \sqrt{\sum_{i=1}^n \left[\frac{\partial Lnf}{\partial x_i} u_B(x_i) \right]^2} \times 100, \quad (28)$$

где $c(x_i) = \frac{\partial Lnf}{\partial x_i}$ – коэффициенты чувствительности $\tilde{u}_B(f_{np})$ к неопределенности *i*-го фактора, определяемые аналогично выражениям (14-16); $u_B(x_i)$ – стандартная неопределенность типа В *i*-той входной величины (влияющего фактора), которая вычислялась исходя из пределов допускаемой погрешности $\theta(x_i)$, в предположении равномерного распределения погрешности на интервале ± $\theta(x_i)$ [15]:

$$u_B(x_i) = \frac{\theta(x_i)}{\sqrt{3}}.$$
(29)

С учетом выражений (25-29), относительная суммарная стандартная неопределенность результата измерения технического светового выхода сцинтилляторов, $\tilde{u}_{c}(C_{ph})$, рассчитывалась для импульсного режима по формуле:

$$\tilde{u}_{c} (C_{ph}) = \sqrt{ \left[\frac{\left[\frac{u_{A}}{\overline{f}_{ph}} \right]^{2} \times 10^{-4} + \left[\frac{\tilde{\Delta} C_{ph 0}}{\sqrt{3}} \right]^{2} + \left[\frac{\theta_{Va}}{\sqrt{3} (V_{a} + V_{0})} \right]^{2} + \left[\frac{\theta_{Vet}}{\sqrt{3} (V_{et} + V_{0})} \right]^{2} \right] \times 10^{-4} (30)$$

для токового режима, по формуле:

$$\tilde{u}_{C} (C_{phe}) = \begin{pmatrix} \left[\frac{u_{A}(\bar{f}_{phe})}{\bar{f}} \right]^{2} \times \mathbf{10}^{4} + \left[\frac{\tilde{\Delta}C_{phe \ 0}}{\sqrt{3}} \right]^{2} + \left[\frac{\theta_{I0}}{\sqrt{3} (I + I_{bg})} \right]^{2} + \left[\frac{\theta_{I0}}{\sqrt{3} (I_{0} + I_{bg})} \right]^{2} + \left[\frac{\theta_{I0}}{\sqrt{3} (I_{0} + I_{bg})} \right]^{2} + \left[\frac{\theta_{I0}}{\sqrt{3} (I + I_{bg})} \right]^{2}$$

Расширенная неопределенность результата измерения технического светового выхода сцинтилляторов, $\tilde{U}_{p}(C_{ph})$, в процентах, вычислялась в соответствии с формулой (1) Руководства:

$$\tilde{U}_{P}(C_{ph}) = k \times \tilde{u}_{C}(C_{ph}).$$
(32)

где k = 2 – значение коэффициента охвата при $P_{\text{Д}} = 0,95$, в предположении о нормальности распределения возможных значений результатов измерений (п. 4.10.3 Руководства).

Расширенная неопределенность результата измерения технического светового выхода сцинтилляторов, $U_P(C_{ph})$, в фот/МэВ, вычислялась аналогично выражению (21):

$$U_{p}(C_{ph}) = \frac{U_{p}(C_{ph})}{100} \times \bar{C}_{ph} .$$
(33)

6. Примеры численных расчетов оценок погрешности и неопределенности измерений технического светового выхода сцинтилляторов

6.1 Оценка входных величин

Для численных расчетов в качестве C_{ph0} использовались значения технического светового выхода рабочих образцов, приведенные в работах [10-12]. Значение суммарной погрешности $\tilde{\Delta}C_{ph0}$, определения технического светового выхода цилиндрических рабочих образцов приведено в статье [16] и составляло 6,5 %.

В качестве C_{phe0} использовалось значение технического светового выхода рабочего образца стрипа, приведенное в статье [17] и равное 8 фэ/МэВ. Значение суммарной погрешности $\tilde{\Delta}C_{ph0}$ определения технического светового выхода рабочего образца стрипа приведено в статье [17] и составляло 5 %.

Анализ источников НСП приборной чувствительности анализирующих приборов, $\theta(x_i)$, проводился в отчете [14]. Численные оценки $\theta(x_i)$ сделаны из следующих соображений: использовался 4096-канальный анализатор с ценой деления шкалы в 1 канал. В этом случае предел погрешности отсчета по шкале не превосходит половины цены деления шкалы или 0,5 канала, то есть $\theta_{Vet} = \theta_{Va} = 0,5$ канала и $\theta_{V0} = 1$ канал. Значение в каналах начальной точки характеристики преобразования СУ $V_0 = -2$.

Аналогично оценивался и предел погрешности отсчетов по шкале МА: $\theta_{Ia} = \theta_{I0} = \theta_{Ibg} = 0,5$ деления. Значение I_{bg} составляло 0,5 деления.

В качестве примеров приведены численные расчеты для сцинтиллятора на основе монокристалла CsI(Tl), имеющего световой выход, равный 35500 фот/МэВ и для ПС-стрипа со световым выходом 6,4 фэ/МэВ.

6.2. Расчет погрешности и неопределенности измерения технического светового выхода CsI(Tl)

Результаты измерений (n=9) амплитуд импульсов V_{et} и V_{a} , отвечающих положению максимума пика полного поглощения, в номерах каналов, от рабочего и испытуемого образцов и отношения амплитуд импульсов f для CsI(Tl) приведены в табл. 2.

Относительное значение СКО случайной погрешности измерения технического светового выхода CsI(Tl), в соответствии с выражениями (7-9), равно:

$$ilde{S}(ar{C}_{_{ph}})_{_{CsI(Tl)}}=0,134~\%$$
 .

1	I		/				
Nº	CsI(Tl)						
измерения	V_{et} , канал	<i>V_a</i> , канал	f				
1	643	642	0,998				
2	643	642	0,998				
3	643	642	0,998				
4	641	640	0,998				
5	641	641	1,000				
6	642	641	0,998				
7	648	642	0,991				
8	648	642	0,991				
9	648	642	0,991				
n	$ar{V}_{_{et}}$, канал	$\overline{V_a}$, канал	\overline{f}				
9	644,1	641,6	0,996				

Таблица 2. Результаты измерения светового выхода CsI(Tl)

Коэффициент Стьюдента $t_{0,95(n-1)}$ для вероятности 0,95 и числа степеней свободы n-1 = 8, $t_{0.95(8)} = 2,306$.

Доверительные границы случайной погрешности измерения технического светового выхода CsI(Tl) в соответствии с выражением (10) будут равны:

$$ilde{arepsilon}(\overline{C}_{_{ph}})_{_{CsI(Tl)}}=2,306 imes0,134=0,31~\%$$
 .

НСП измерения технического светового выхода CsI(Tl) равна:

$$\tilde{\Theta}(C_{ph})_{CsI(Tl)} = 1,1 \left[\begin{array}{c} (6,5)^2 + \\ \left[\left(\frac{0,5}{643,6} \right)^2 + \left(\frac{0,5}{646,1} \right)^2 + \\ + \left(\frac{644}{646,1} , \frac{1+641}{646,1} , \frac{6+4}{6} \right)^2 \\ \times \left[\left(\frac{1}{643,6} \right)^2 \right]^2 \end{array} \right] \times 10^4 = 7,15 \%.$$

Доверительные границы относительной суммарной погрешности измерения технического светового выхода CsI(Tl), в процентах, будут равны:

$$ilde{\Delta} C_{_{phCsI(Tl)}} = \sqrt{0,31^2+7,15^2} = 7,17~\%\,.$$

Доверительные границы абсолютной суммарной погрешности измерения технического светового выхода CsI(Tl), в фот/МэВ, будут равны:

$$\Delta(C_{ph})_{CsI(Tl)} = \frac{7,17}{100} \times 35500 = 2550 \text{ dot/M} = B.$$

Относительное значение стандартной неопределенности типа А измерения технического светового выхода CsI(Tl), в процентах, вычисляется аналогично СКО случайной погрешности и равно:

$$\tilde{u}_{A}(C_{ph})_{CsI(Tl)} = 0,134$$
 %

Относительное значение суммарной стандартной неопределенности результата измерения технического светового выхода CsI(Tl), в процентах в соответствии с выражением (30) равно:

$$\tilde{u}_{C}(C_{ph})_{CsI(Tl)} = \left\{ \begin{aligned} 0, 134 \ ^{2} + \left[\frac{6,5}{\sqrt{3}}\right]^{2} + \\ \left[\frac{0,5}{\sqrt{3}\cdot 643,6}\right]^{2} + \left[\frac{0,5}{\sqrt{3}\cdot 646,1}\right]^{2} + \\ + \left[\frac{644,1+641,6+4}{\sqrt{3}\cdot 646,1}\right]^{2} \times \left[\frac{1}{\sqrt{3}\cdot 643,6}\right]^{2} \right] \times 10^{-4} \end{aligned} = 3,76 \%$$

Относительное значение расширенной неопределенности результата измерения технического светового выхода CsI(Tl), в процентах, в соответствии с выражением (32) равно:

$$\tilde{U}_{_{p}}(C_{_{ph}})_{_{CsI(Tl)}}=2\times 3,76=7,52~\%$$
 .

Абсолютное значение расширенной неопределенности результата измерения технического светового выхода CsI(Tl), в фот/МэВ, в соответствии с выражением (33), равно

$$U_{p}(C_{ph})_{CsI(Tl)} = \frac{7,52}{100} \times 35500 = 2670 \text{ dot/M} \cdot B.$$

6.3. Расчет погрешности и неопределенности измерения технического светового выхода стрипа

Результаты измерений (n=3) величин анодных токов ФЭУ I_0 и I, в делениях выбранной шкалы МА, от рабочего и испытуемого образцов и отношения токов f для стрипа приведены в табл. 3.

Вычисление оценок погрешности и неопределенности измерения технического светового выхода стрипа производилось аналогичным образом.

Относительное значение СКО случайной погрешности измерения равно:

$$ilde{S}(ar{C}_{_{phe}})$$
strip = 1,11 %

Коэффициент Стьюдента $t_{0,95(n-1)}$ для вероятности 0,95 и числа степеней свободы n-1 = 2, $t_{0,95(2)} = 4,3$. Доверительные границы случайной погрешности равны:

$$ilde{arepsilon}({ar{C}_{_{phe}}})$$
strip $=4,3\! imes\!1,\!11\!=4,77~\%$

НСП измерения технического светового выхода стрипа равна:

$$\tilde{\Theta}(C_{phe})_{Strip} = 1,1 \left| \begin{array}{c} 5^{2} + \\ \left[\left(\frac{0.5}{24,5} \right)^{2} + \left(\frac{0.5}{30,5} \right)^{2} + \\ + \left(\frac{30 + 24 + 1}{30,5} \right)^{2} \times \\ \left[\left(\frac{0.5}{24,5} \right)^{2} \end{array} \right] \times 10^{4} \end{array} \right| = 7,78 \%$$

No	ПС – стрип						
измерения	I_0 + I_{bg} , делений	I + I_{bg} , делений	$f = I/I_0$				
1	30	24,5	0,814				
2	31	25	0,803				
3	30, 5	24	0,783				
n	$\overline{I_{_0}+I_{_{bg}}}$, делений	$\overline{I+I_{_{bg}}}$, делений	\overline{f}				
3	30,5	24,5	0,800				

Таблица 3 Результаты измерения светового выхода ПС-стрипа

Доверительные границы относительной суммарной погрешности измерения технического светового выхода стрипа, в процентах, будут равны:

$$ilde{\Delta} C_{{}_{pheStrip}} = \sqrt{4,77^2+7,78^2} = 9,13~\%$$
 ;

Доверительные границы абсолютной суммарной погрешности измерения технического светового выхода стрипа, в фэ/МэВ, будут равны:

$$\Delta(C_{_{phe}})_{_{Strip}}=rac{9,13}{100} imes 6,4=0,58$$
 $m \oplus$ ə/MəB.

Относительное значение стандартной неопределенности типа А измерения технического светового выхода стрипа, в процентах, равно:

$$\tilde{u}_{A}(C_{phe})_{Strip} = 1,11 \%$$

Относительное значение суммарной стандартной неопределенности результата измерения технического светового выхода стрипа, в процентах, равно:

$$ilde{u}_{_{C}}(ar{C}_{_{phe}})_{_{Strip}} = egin{aligned} & 1,11^{2} + \left[rac{5}{\sqrt{3}}
ight]^{2} + \ + \left[rac{0,5}{\sqrt{3}\cdot24,5}
ight]^{2} + \left[rac{0,5}{\sqrt{3}\cdot30,5}
ight]^{2} + \ + \left[rac{30+24+1}{\sqrt{3}\cdot30,5}
ight]^{2} imes \left[rac{0,5}{\sqrt{3}\cdot24,5}
ight]^{2}
ight\} imes 10^{4} \end{aligned} = 4,05\%$$

Current	C		C	$S\left(C_{ph}\right)$		$\epsilon(C_{ph})$		$\theta (f_{np.})$		$\Theta \; (C_{ph})$		ΔC_{ph}	
лятор	с _{рh0} , фот/ МэВ	f	С _{рh} , фот/ МәВ	Абс., фот/ МәВ	Отн., %	Абс., фот/ МәВ	Отн., %	Абс., фот/ МәВ	Отн., %	Абс., фот/ МәВ	Отн., %	Абс., фот/ МәВ	Отн., %
CsI(Tl)	35600 [11]	0,996	35500	47,65	0,134	109,88	0,31	128,40	0,362	2541	7,16	2543	7,17
NaI(Tl)	31600 [10]	0.934	29500	30,40	0,105	79,68	0,27	89,71	0,304	2110	7,15	2115	7,17
п- терфенил	14000 [12]	0,977	13700	44,25	0,320	102,05	0,75	45,02	0,33	979	7,16	985	7,2
Антрацен	11500 [12]	0,961	11100	38,84	0,350	89,57	0,81	64,14	0,58	793	7,18	798	7,22
Стильбен	7200 [16]	1,098	7900	45,23	0,570	104,29	1,32	102,14	1,29	576	7,29	586	7,41
CWO	6500 [11]	0,778	5100	8,45	0,167	19,49	0,39	21,22	0,42	363	7,16	363	7,18
BGO	4400 [11]	0,638	2800	19,22	0,687	44,32	1,58	30,16	1,08	203	7,25	208	7,42
ПС-стрип	62 [18]	0,800	50	0,56	1,110	2,39	4,77	2,53	5,06	3,89	7,78	4,57	9,13

Таблица 4. Расчет погрешности измерения технического светового выхода исследуемых сцинтилляторов

Таблица 5. Расчет неопределенности измерения технического светового выхода исследуемых сцинтилляторов

C		$u_A(C_{ph})$		$u_B(f_{np})$		$u_B(C_{ph})$		$u_C(C_{ph})$		$U_P(C_{ph})$	
Сцинтиллятор	фот/МэВ	Абс., фот/МэВ	Отн., %	Абс., фот/МэВ	Отн., %	Абс., фот/МэВ	Отн., %	Абс., фот/МэВ	Отн., %	Абс., фот/МэВ	Отн., %
CsI(Tl)	35 500	47,65	0,134	67,39	0,19	1333	3,76	1334	3,760	2670	7,52
NaI(Tl)	29500	30,0 0	0,102	51,92	0,18	1105	3,75	1108	3,76	2220	7,52
п-терфенил	13700	44,25	0,32 0	23,63	0,17	514	3,76	516	3,77	1032	7,54
Антрацен	11100	38,84	0,35 0	33,67	0,31	416	3,77	418	3,78	836	7,56
Стильбен	7900	45,23	0,570	53,61	0,68	301	3,81	305	3,86	610	7,71
CWO	5100	8,45	0,167	11,14	0,22	190	3,76	191	3,76	381	7,53
BGO	2800	19,22	0,687	15,83	0,57	106	3,80	108	3,8 6	216	7,71
ПС-стрип	50	0,56	1,110	1,33	2,66	1,96	3,92	2,03	4,05	4	8,10



Рис. 7.

Относительное значение расширенной неопределенности результата измерения технического светового выхода стрипа, в процентах, равно

$${ ilde U}_{_p}(C_{_{phe}})_{_{Strip}}=2\!\times\!4,05=8,10~\%$$
 .

Абсолютное значение расширенной неопределенности результата измерения технического светового выхода стрипа, в фэ/МэВ, равно:

$$U_{p}(C_{phe})_{Strip} = \frac{8,10}{100} \times 6.4 = 0,52 \text{ dp}/\text{M} \Rightarrow \text{B}.$$

Полученные оценки качества результата измерений технического светового выхода исследуемых сцинтилляторов приведены



Рис. 8.



Рис. 9.

в табл. 4 и табл. 5. Для большей наглядности часть результатов приведена в виде гистограмм на рис. 7, рис. 8 и рис. 9.

Для сравнения величин технического светового выхода цилиндрических образцов и стрипа значение светового выхода последнего, в фэ/Мэв, было пересчитано в фот/МэВ. Для пересчета использовался коэффициент квантовой эффективности фотокатода ФЭУ, приведенный в статье [18].

Случайная и систематическая погрешности и неопределенности по типу А и по типу В результата измерений светового выхода CsI(Tl) и стрипа приведены на рис. 7.

Из рис. 7 видно, что случайная погрешность S(\bar{C}_{ph}) и неопределенность по типу A $u_A(\bar{C}_{ph})$ измерения светового выхода ПС-стрипа значительно выше, чем для CsI(Tl). Это связано с гораздо меньшим числом измерений для стрипа и малыми значениями анодных токов ФЭУ. Систематическая погрешность $\Theta(C_{ph})$ и неопределенность по типу В $u_B(C_{ph})$ измерения светового выхода CsI(Tl) и ПС-стрипа сопоставимы по величине.

Вклады составляющих систематической погрешности и неопределенности по типу В в результат измерений светового выхода, а также значения суммарных систематической погрешности и неопределенности по типу В для всех сцинтилляторов приведены на рис. 8.

Как видно из рис. 8, определяющий вклад в величину суммарной систематической погрешности $\Theta(C_{ph})$ и неопределенности по типу В $u_B(C_{ph})$ измерения технического светового выхода сцинтилляторов вносит погрешность (неопределенность) вышестоящего рабочего образца ΔC_{ph0} (Δu_{Bph0}).

Значения оценок суммарной погрешности и расширенной неопределенности для всех испытуемых сцинтилляторов приведены на рис. 9. Из рис. 9 следует, что суммарная погрешность ΔC_{ph} и расширенная неопределенность $U_p(C_{ph})$ измерения технического светового выхода сцинтилляторов изменяются в незначительных пределах – от 7 % до 9 % – при изменении технического светового выхода сцинтилляторов от 50 фот/МэВ до 35000 фот/МэВ, что также

	Погрешность	Неопределенность				
Сцинтиллятор	$ar{C}_{_{ph}}\pm\Delta C_{_{ph}}$	$ar{C}_{ph} - {U}_p \div ar{C}_{ph} + {U}_p$				
CsI(Tl)	35500 ± 2500	$32800 \div 38000$				
NaI(Tl)	29500 ± 2100	$27300 \div 31700$				
П-терфенил	13700 ± 1000	$12700 \div 14700$				
Антрацен	11100 ± 900	$10300 \div 11900$				
Стильбен	7900 ± 600	$7300 \div 8500$				
CWO	5100 ± 400	$4700 \div 5500$				
BGO	2800 ± 200	$2600 \div 3000$				
ПС-стрип	50 ± 5	$46 \div 54$				

Таблица 6. Интерпретация результатов измерений технического светового выхода сцинтилляторов при различных оценках качества измерений

связано с доминирующим вкладом погрешности (неопределенности) рабочего образца в суммарные значения.

В заключение отметим, что интерпретация полученных результатов измерений технического светового выхода сцинтилляторов при расчете погрешности и неопределенности различна.

С точки зрения «концепции погрешности», полученное значение технического светового выхода представляется в виде $\bar{C}_{ph} \pm \Delta C_{ph}$, фот/МэВ, где \bar{C}_{ph} , фот/МэВ, является результатом измерения, а значение $\pm \Delta C_{ph}$, фот/МэВ, является погрешностью.

С точки зрения «концепции неопределенности», полученное значение технического светового выхода представляет собой неотрицательный интервал (\bar{C}_{ph} - $U_p(C_{ph})$, \bar{C}_{ph} + $U_p(C_{ph})$), фот/МэВ, который приписывается измеряемой величине. Различные интерпретации результатов измерения технического светового выхода сцинтилляторов представлены в табл. 6.

7. Выводы

Рассмотрены процедуры оценивания погрешности и вычисления неопределенности измерений технического светового выхода сцинтилляторов. Определены и оценены источники погрешности и неопределенности.

Показано, что определяющий вклад в величину погрешности и неопределенности измерения технического светового выхода сцинтилляторов при использовании метода сравнения вносит погрешность (неопределенность) рабочего образца

Показано, что при измерении сцинтилляторов с существенно отличающимися значениями технического светового выхода рассчитанные значения погрешностей (неопределенностей) близки друг к другу. Данное заключение дает возможность применять используемые методики оценки качества результатов измерений для сцинтилляторов в широком интервале значений технического светового выхода. Полученный вывод можно распространить и на другие виды относительных измерений, у которых определяющий вклад в суммарную погрешность (неопределенность) вносит погрешность (неопределенность) вышестоящего образца.

В заключение можно отметить, что в настоящее время понятие «неопределенность измерений» при международном сравнении результатов стало широко используемым. В отечественной же практике измерений вполне еще уместно оперировать понятиями «погрешность» и «характеристики погрешности».

Литература

- 1. Guide to the Expression of Uncertainty in Measurement (GUM): First edition. – ISO, Switzerland, 1993. – 101 p.
- 2. ДСТУ 2681-94 Метрологія. Терміни та визначення
- ГОСТ Р 54500.3—2011/Руководство ИСО/МЭК 98-3:2008. Неопределенность измерения. Часть 3. Руководство по выражению неопределенности измерения

- 4. ДСТУ-Н РМГ 43:2006 Метрологія. Застосування «Руководства по выражению неопределенности измерений» (РМГ 43-2001, IDT)
- 5. ГОСТ 17038.3-79 Детекторы ионизирующих излучений сцинтилляционные. Метод измерения светового выхода детектора по пику полного поглощения или краю комптоновского распределения
- IEC 62372:2006 Nuclear instrumentation Housed scintillators – Measurement methods of light output and intrinsic resolution (Ядерне приладобудування. Сцинтилятори упаковані. Методи контролювання технічного світлового виходу та власної роздільної здатності.
- 7. ДСТУ IEC 62372:2009 Ядерне приладобудування. Сцинтилятори упаковані. Методи контролювання технічного світлового виходу та власної роздільної здатності (IEC 62372:2006, IDT)
- Гринев Б.В., Зеленская О.В., Любинский В.Р., Мицай Л.И., Молчанова Н.И., Тарасов В.А. Определение относительного светового выхода стрипов на основе пластмассовых сцинтилляторов // Метрологія та вимірювальна техніка: Наукові праці IX Міжнародної науково-технічної конференції, 2014, м. Харків. – С. 249-253
- 9. ГОСТ 17038.2-79 Детекторы ионизирующих излучений сцинтилляционные. Метод измерения светового выхода детектора по анодному току фотоэлектронного умножителя
- Сравнительный анализ методик вычислений погрешности и неопределенности измерений на примере сцинтиллятора / Б.В. Гринев, Н.Р. Гурджян, О.В. Зеленская, В.Р. Любинский, Н.И. Молчанова, В.А. Тарасов // Метрологія та вимірювальна техніка: Наукові праці VIII Міжнар. наук.-техн. конф., 2012, м. Харків. – С. 54-60
- Оценка качества результатов измерений светового выхода упакованных сцинтилляторов на основе неорганических кристаллов / Б.В. Гринев, Н.Р. Гурджян, О.В. Зеленская, В.Р. Любинский, Н.И. Молчанова, В.А. Тарасов // «Метрологія та прилади». – 2013. – №1. – С. 31-39

- Гринев Б.В., Гурджян Н.Р., Зеленская О.В., Любинский В.Р., Молчанова Н.И., Тарасов В.А. О различных подходах к выражению характеристик точности измерений светового выхода органических сцинтилляторов // Метрологія та прилади, 2013. – №5. – С. 20-27
- 13. ДСТУ ГОСТ 8.207:2008 ГСИ. Прямые измерения с многократными наблюдениями. Методы обработки результатов наблюдений. Основные положения
- Отчет по теме НИР «Разработка методов и метрологическое обеспечение контроля качества упакованных сцинтилляционных кристаллов». – Институт монокристаллов. – Харьков, 1980. – 118 с.
- А.А. Данилов, И.П. Захаров. Еще раз о достоверности оценок характеристик неопределенности и погрешности измерений // Системи обробки інформації, 2015. – Випуск 2 (127)-С. 29-31
- E. Sysoeva, V. Tarasov, O. Zelenskaya Comparison of the methods for determination of Scintillation Light Yield (Сравнение методов определения светового выхода сцинтилляторов) // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, A 486. - 2002. – P. 67-73
- 17. A. Dyshkant et al. Fermilab-Conf-06-281
- Ю.А. Будагов, О.Е. Пухов, И.Е. Чириков-Зорин, М. Инкагли, С. Леоне, А. Мензионе, С. Токар. Большие сцинтилляционные счетчики со световодами из спектросмещающих волокон // Препринт Объединенного института ядерных исследований. Дубна, 1998.

ОПТИМИЗАЦИЯ СПЕКТРА ИОНИЗИРУЮЩЕГО ИЗЛУЧЕНИЯ В РЕНТГЕНОВСКИХ СИСТЕМАХ ЛИЧНОГО ДОСМОТРА

Д.М. Касюк, Д.В. Поздняков, В.Н. Линев, К.В. Сосенко

УП «АДАНИ», Минск, Беларусь

Введение

Сканеры личного досмотра, в основе которых лежит рентгеновская просвечивающая технология, предназначены для получения проекционного рентгеновского изображения человека с целью выявления опасных и запрещенных предметов, материалов и веществ, спрятанных под одеждой и внутри человеческого тела. Сканирование осуществляется путем пересечения человеком веерообразного пучка рентгеновских лучей. Прошедшее через одежду и тело человека рентгеновское излучение регистрируется линейкой детекторных модулей. Качественными показателями такой системы, в общем случае, являются визуальное качество рентгеновского изображения и доза облучения ионизирующим излучением за одно сканирование. На указанные характеристики влияют такие параметры, как материал анодной мишени рентгеновского излучателя, ускоряющее анодное напряжение, материал дополнительного фильтра и его толщина, что в совокупности определяет спектр рентгеновского излучения. В качестве материала мишени анода чаще всего используется вольфрам, а в качестве фильтров – алюминий и медь. В настоящей работе в качестве перспективного материала для фильтра была рассмотрена латунь Cu_{0 63}Zn_{0 37}, являющаяся куда
более высокотехнологичным и дешевым материалом в сравнении с чистой медью. При этом латунь совершенно незначительно отличается от неё по степени ослабления рентгеновского излучения.

В данной работе представлены результаты решения двух прикладных задач:

- Оптимизация спектра рентгеновского излучения путем вариации толщины дополнительного латунного фильтра для рентгеновского источника с вольфрамовой анодной мишенью.
- Профилирование уровня сигнала, получаемого с цифрового детектора рентгеновского излучения относительно области пространства, представляющей наибольший интерес для досмотра.

Задача решалась путем математического моделирования в рамках феноменологического подхода [1, 2] с учетом диаграммы направленности рентгеновского излучения, формируемого источником, а также геометрии системы досмотра.

Постановка задачи и методика исследования

Оптимизация спектра излучения

Задача оптимизации спектра рентгеновского излучения является многокритериальной, где в качестве критериев выступают качество изображения и дозовая нагрузка. Учитывая тот факт, что качество изображения должно быть максимальным, а дозовая нагрузка минимальной, комбинация названных критериев в виде отношения позволяет свести многокритериальную задачу оптимизации к однокритериальной. В системах с цифровым детектированием для характеристики качества изображения, как правило, выбирают величину отношения контраст-шум (*CNR*) [3, 4]. Дозовая нагрузка (*D*) на объект исследования пропорциональна поглощенной в нем энергии излучения, и функция цели имеет вид

$$F = \frac{CNR^2}{D} \,. \tag{1}$$



Рис. 1 Одномерная модель получения рентгеновского изображения.

Использование CNR^2 вместо CNR позволяет стандартным образом исключить зависимость функции цели от экспозиционной дозы [5].

Для выбранного материала анодной мишени и фильтра качество излучения определяется анодным напряжением (kV) и толщиной фильтра (h_f). Указанные характеристики, как раз, и представляют собой параметры оптимизации.

В данном исследовании использовалось одномерное приближение процесса переноса излучения и его взаимодействия с веществом, модель которого представлена на рисунке 1.

После прохождения пучка фотонов $N_0(E)$ через фильтр толщиной h и плотностью ρ , оставшееся число фотонов в пучке N(E)определяется согласно формуле

$$N(E) = N_0(E) \cdot Exp(-\mu_{tot}(E) \cdot \rho \cdot h), \qquad (2)$$

где $\mu_{tot}(E)$ – массовый коэффициент затухания рентгеновского излучения в заданном веществе.

Учитывая то, что доза ионизирующего излучения определяется лишь фотонами, которые передали свою энергию электронам по механизму фотоэффекта, справедливо следующее равенство:

$$D = \int \left(\mathbf{1} - Exp\left(-\mu_{tot}\left(E\right) \cdot \rho \cdot h \right) \right) \cdot \frac{\mu_{en}\left(E\right)}{\mu_{tot}\left(E\right)} \cdot N\left(E\right) \cdot E \cdot dE , \qquad (3)$$

где $\mu_{en}(E)$ — массовый коэффициент затухания рентгеновского излучения в рассматриваемом материале по механизму фотоэффекта, ρ и h — плотность и толщина материала, соответственно. Если воспользоваться формулой (3) с подстановкой параметров ρ и h, характеризующих уже не фоновый материал, а сцинтиллятор детектора, то полученная величина будет пропорциональна уровню сигнала на детекторе. Тогда для расчета функции цели (1) можно воспользоваться формулой

$$F = \frac{\left(I_1 - I_2\right)^2}{D \cdot \left(I_1 + I_2\right)},$$
(4)

Оптимизация выполнялась для параметров модели, приведенных в таблице 1.

Профилирование уровня сигнала на детекторе

При личном досмотре с помощью рентгеновского сканирования области головы и нижних конечностей не представляют особого интереса, тогда как область брюшной полости наиболее интересна. Для уменьшения дозовой нагрузки на эти участки тела необходимо спрофилировать фильтрацию излучения по высоте щели излучателя. С применением разработанной методики можно решить задачу восстановление профиля фильтра, который обеспечивает заданный профиль сигнала на детекторе с учетом реальной гео-

Параметр	Химический состав, весовые проценты	Толщина, мм
Конструкционные материалы	O – 17; C – 74; H – 9	3.5
Фон	O - 67; N - 3; C - 19; H - 11	300.0
Тест-объект	$H_2O - 100$	1.0
Сцинтиллятор	CsI - 100	4.0

Таблица 1.



Рис. 2. Зависимость уровня сигнала на детекторе от толщины дюралевого фильтра

метрии системы и взаимного расположения ее элементов, а также параметров излучателя.

Результаты

Верификация модели

Для верификации модели было выполнено измерение уменьшения уровня сигнала на детекторе с ростом толщины фильтра для анодного напряжения равного 160 кВ.

Результаты вычислительного эксперимента представлены на рисунке 2, который демонстрирует хорошее согласие теоретического расчета с экспериментальными измерениями.

Оптимизация качества излучения

На рисунке 3 представлена зависимость относительной функция цели для модели с вольфрамовым анодом и латунным фильтром от двух параметров: толщины фильтра и анодного напряжения. Дополнительно приведена такая же зависимость для фильтра из дюрали Д16. С ростом напряжения и толщины филь-



Рис. 3. Изолинии функций цели для фильтров из латуни и дюрали



Рис. 4. Рассчитанный (красная кривая) и экспериментальный (черная кривая) уровни сигнала на детекторе рентгеновского излучения

трации наблюдается рост величины отношения между качеством изображения и дозовой нагрузкой. Однако следует отметить, что максимальное значение функции цели не может быть реализовано на практике, так как с ростом толщины фильтрации уменьшается уровень сигнала. Для сохранения его на требуемом уровне необходимо увеличивать ток рентгеновской трубки, на который имеется техническое ограничение. В допустимой области значений толщин латуни (0.1–0.3 мм) одинаковые значения функции цели достигаются при использовании дюралевого фильтра с толщиной около 5 мм. С технологической точки зрения использование дюралюминия предпочтительной, поскольку это дает возможность выполнить гораздо более точное профилирование уровня сигнала на детекторе путем профилирования толщины фильтра.

На рисунке 4 представлено сравнение рассчитанного профиля уровня сигнала на детекторе с измеренным. Моделирование выполнялось с учетом диаграммы направленности рентгеновского излучения, формируемого источником, и геометрии досмотровой системы. Приведенные результаты подтвердили обоснованность использования рассмотренной методики для решения прикладных задач повышения эффективности досмотровых рентгеновских систем.

Литература

- 1. Seibert J.A., Boone J.M. X-ray imaging physics for nuclear medicine technologists. Part 2: X-ray interactions and image formation. J. Nucl. Med Technol. 2005 Mar. 33(1):3–18.
- 2. Tomal A., Poletti M.E., Caldas L.V. Evaluation of subject contrast and normalized average glandular dose by semi-analytical models. Appl. Radiat. Isot. 2010 Apr-May. 68(4-5):755-9.
- 3. P. Bernhardt et.al / X-ray spectrum optimization of full-field digital mammography // Med. Phys. Vol. 33 (11), Nov. 2006, pp. 4337–4349.
- 4. Hye-Suk Park et.al / Optimization of the Imaging Parameters in Clinical Digital Mammography // Journal of the Korean Physical Society, Vol. 59, No. 1, Jul. 2011, pp. 176–182.
- 5. E. Samei et.al / A framework for optimizing the radiographic technique in digital x-ray imaging // Radiation Protection Dosimetry, Vol. 114, Nos 1-3, 2005, pp. 220–229.

ПРИМЕНЕНИЕ КЛАСТЕРНЫХ МЕТОДОВ ДЛЯ АНАЛИЗА ДИНАМИЧЕСКИХ СЦИНТИГРАФИЧЕСКИХ ИЗОБРАЖЕНИЙ В РАДИОНУКЛИДНОЙ ДИАГНОСТИКЕ

А.В.Демин

Институт сцинтилляционных материалов НАН Украины, пр. Науки 60, Харьков 61001, Украина

Аннотация

Гамма-камера – основной инструмент современной радионуклидной диагностики. Гамма-камеры предназначены для визуализации и исследования кинетики радиофармпрепаратов во внутренних органах и физиологических системах организма пациента с целью ранней диагностики онкологических, сердечно-сосудистых и других заболеваний человека. В данной статье рассматриваются возможности автоматизирования процесса анализа динамических сцинтиграфических исследований за счёт применения методов кластерного анализа. Эта задача актуальна как с точки зрения оптимизации процесса диагностики у улучшения её результатов, так и для обработки больших массивов медицинских данных, накопленных в централизованных хранилищах, что создает предпосылки для появления новых, компьютерных методов в популяционных исследованиях, медицинской статистике, эпидемиологии и тому подобное. Рассмотрены различные методики кластерной обработки — иерархические, информационно-экстремальные, k-средних с точки зрения их применимости для обработки медицинских сцинтиграфических изображений.

Введение

Радионуклидные исследования [1] функционального состояния внутренних органов и систем человека является одним из сегментов медицинской диагностики, который динамично развивается. К преимуществам радионуклидной диагностики относят высокую информативность, неинвазивность, по сравнению низкая лучевая нагрузка [2-4]. При этом гармоничное сочетание новаций в области математических алгоритмов визуализации диагностических данных и разработки сцинтилляционных и полупроводниковых детекторов обеспечивают непрерывный прогресс в данной области. Однако, несмотря на то, что современные технические средства радионуклидной диагностики существенно расширили объем диагностических данных и возможности их визуального представления, окончательное принятие диагностических решений все еще остается за врачом. При этом достоверность диагностирования существенно зависит от уровня профессиональной подготовки врача-диагноста и его практического опыта [5,6].

Основным источником информации о функциональном состоянии органов при радионуклидной диагностике является серия радиоизотопных изображений, которая описывает изменение распределения радиофармпрепаратов во времени. При этом пространственно-временные радиоизотопные образы имеют различия не только для различных органов и тканей, но и для различных функциональных состояний каждой из зон интереса [7]. Поскольку наблюдения является многомерными, а само исследование происходит при произвольных начальных условиях, то одним из перспективных направлений повышения эффективности диагностических систем данного типа является применение идей и методов машинного обучения и распознавания образов. Однако в условиях несбалансированности и пересечения классов распознавания, что характерно для задач медицинской диагностики, традиционные подходы к интеллектуальному анализу данных, среди которых наиболее развиты бионические, характеризуются невысокой достоверностью и требуют значительных вычислительных ресурсов [8]. Повышение оперативности машинного обучения является главными задачами при разработке сервисов распределенной поддержки врачебных решений в условиях виртуальной интеграции и консолидации больших объемов диагностических данных и знаний [9].На решение таких задач направлена информационно-экстремальная интеллектуальная технология (IEI-технология), в которой двоичное пороговое кодирования признаков позволяет трансформировать пространство признаков с помощью простых операций сравнения, а сглаживающий эффект логарифмических информационных мер обеспечивает высокую обобщающую способность и достоверность решающих правил [10,11].

За последние годы в мире созданы крупные проекты для сохранения в ГРИД медицинских данных [12], в частности медицинских изображений в национальном масштабе. Основной целью этих проектов было длительное (в течение всей жизни пациента) хранения данных, и эта цель по большому счету выполнена. Теперь существование таких больших баз медицинской информации ставит вызовы по ее обработке для проведения эпидемиологических, статистических, популяционных и других научных исследований. Поэтому большую актуальность в настоящее время имеет разработка методов для автоматизации обработки медицинских данных и их систематизации. Именно для этих задач могут быть применены методы кластерного анализа. . Социальная значимость работы заключается в создании новых методов обработки больших массивов медицинской информации, создает предпосылки для появления новых, компьютерных методов в диагностике, медицинской статистике, эпидемиологии и тому подобное.

В медицине широко используют компьютерные технологии – томографы, рентгеновские аппараты, гамма – камеры и т.д., но, к сожалению, сложность использования этих установок большая и для использования полных возможностей нужны годы подготовки. Поэтому изобретают и рассматривают новые методы упрощения работы с компьютеризированными аппаратами. Один из них — распознавание образов и автоматический вывод всей информации об области интереса. Этот способ ускорил бы процесс исследования информативного изображения, что в дальнейшем помогло бы вовремя отреагировать на необходимость немедленного лечения пациента.

Гамма-камера – основной инструмент современной радионуклидной диагностики. Гамма-камеры предназначены для визуализации и исследования кинетики радиофармпрепаратов во внутренних органах и физиологических системах организма пациента с целью ранней диагностики онкологических, сердечно-сосудистых и других заболеваний человека. После проведения радионуклидного исследования необходимо провести анализ полученных результатов. На данный момент процесс анализа не является полностью автоматическим, поскольку область интереса выбирается вручную, непосредственно лечащим врачом. Такой способ выделения зон наблюдения может привести к необъективным результатам изза неточного определения области интереса. Для устранения это проблемы необходимо создать кластерную модель и алгоритмы, автоматически выполняют эту процедуру.

Принципы функционирования гамма-камеры

Суть методов ядерной медицины заключается во введении пациенту фармпрепарата, который соединен с радионуклидной меткой [6,7,13]. В зависимости от введенного радиофармпрепарата он накапливается в том или ином органе. Основным прибором для регистрации гамма квантов, излучаемых радионуклидной меткой, и восстановление пространственного распределения радиофирмпрепарата в организме человека является гамма-камера. Конструктивные особенности гамма-камеры [13,14] позволяют обеспечить приемлемую из практических соображений пространственное разрешение и высокую скорость визуализации гамма-излучения от радиофармпрепаратов, введенного в организм пациента.



Рис. 1. Структура гамма-камери

Гамма-камера может зафиксировать конечное распределение радиофармпрепарата в виде статического снимка. При этом изображение собирается с большой экспозицией — 5–20 мин. Такой режим используется, например, для исследования органов, нахождения опухолей и метастазов. Также может быть проведено динамическое исследование, при котором собирается серия изображений, следующих друг за другом с малой экспозицией. Этот режим применяется для функционального исследования различных систем организма. При этом изучается изменение распределения радиофармпрепаратов во времени.

В общем виде структура гамма-камеры состоит из следующих узлов (рис.1):

- свинцовый коллиматор для формирования параллельной геометрии сбора гамма квантов
- сцинтилляционный кристалл в котором осуществляется преобразование гамма-излучения в фотоны
- набор фотоэлектронных умножителей, преобразующих поступающий из кристалла свет в электрические импульсы

- электронное устройство регистрации и обработки информации

 преобразователя сигналов дифференциального дискриминатора в цифровую информацию
- компьютер для управления процессом сбора данных и их обработки.

Гамма-кванты, прошедшего сквозь отверстия коллиматора попадают на сцинтилляционный кристалл и вызывают световую вспышку, именуемую сцинтилляцией. Фотоны видимого света из вспышки воспринимаются фотоэлектронными умножителями, превращающими их в электрические сигналы. Продолжительность светового вспышки в кристалле должна быть минимальной для того, чтобы не происходило наложения на нее дальнейших сцинтилляций. Для наиболее распространенного в радионуклидной диагностике кристалла Nal (Tl) продолжительность каждой сцинтилляции составляет около 280 нс.

В современных гамма-камерах сцинтиллятор имеет удобную для проведения исследований четырехугольную форму и размеры, обеспечивающие поле зрения около 60×40 см. Для регистрации сцинтилляций используют около 60 фотоэлектронных умножителей с диаметром фотокатода 3 и 2 дюйма. При этом основные технические характеристики гамма-камеры определяются качеством блока детектирования, характеризуются полезным поля зрения детектора, степенью неоднородности поля зрения, энергетическим и пространственным разрешениями, нелинейными искажениями и быстродействием гамма-камеры (скорость счета).

Гамма-камеры достаточно консервативная техника в плане конструктивного исполнения. Оборудование данного типа достигло пределов насыщения техническими инновациями и основные изменения касаются программного обеспечения с целью предоставления врачу удобного инструментария для обработки медицинских изображений и постановки диагноза.

Обзор методов кластеризации

Задача кластеризации (или обучение без учителя) заключается в следующем. Имеется обучающая выборка $X_{\ell} = \{x_1, ..., x_{\ell}\} \subset X$ и функция расстояния между объектами $\rho(x,x')$. Нужно разбить выборку на непересекающиеся подмножества, называемые кластерами, так, чтобы каждый кластер состоял из объектов, близких по метрике ρ , а объекты разных кластеров существенно отличались. При этом каждому объекту $x_i \in X_{\ell}$ приписывается метка (номер) кластера y_i . Алгоритм кластеризации – это функция: X → Y, которая любому объекту $x \in X$ ставит в соответствие метку кластера $y \in Y$. Множество меток У в некоторых случаях известно заранее, однако чаще ставится задача определить оптимальное число кластеров, с точки зрения того или иного критерия качества кластеризации. Решение задачи кластеризации принципиально неоднозначно, и тому есть несколько причин. Во-первых, не существует однозначно лучшего критерия качества кластеризации. Известен целый ряд достаточно разумных критериев, а также ряд алгоритмов, которые не имеют четко выраженного критерия, но осуществляющих достаточно разумную кластеризацию «по построению». Все они могут давать разные результаты. Во-вторых, число кластеров, как правило, неизвестно заранее и устанавливается в соответствии с некоторым субъективным критерием. В-третьих, результат кластеризации существенно зависит от метрики ρ, выбор которой, как правило, также субъективен и определяется экспертом. Кластеризация (обучение без учителя) отличается от классификации (обучение с учителем) тем, что метки исходных объектов у; изначально не заданы, и даже может быть неизвестно само множество Ү. В этом смысле задача кластеризации еще большей степени некорректно поставлена, чем задача классификации.

Цель кластеризации может быть разной в зависимости от особенностей конкретной прикладной задачи:

- Понять структуру множества объектов Х_ℓ, разбив его на группы схожих объектов. Упростить дальнейшую обработку данных и принятия решений, работая с каждым кластером отдельно.
- Сократить объем данных, хранящихся в случае сверхбольшой выборки X_ℓ, оставив по одному наиболее типичному представителю от каждого кластера.
- Выделить нетипичные объекты, которые не подходят ни к одному из кластеров. Эту задачу называют одноклассовой классификацией, выявлением нетипичности или новизны

В первом случае число кластеров стараются сделать поменьше. Во втором случае важнее обеспечить высокую степень сходства объектов внутри каждого кластера, а кластеров может быть сколько угодно. В третьем случае наибольший интерес представляют отдельные объекты, не вписывающиеся ни в один из кластеров. Во всех этих случаях может применяться иерархическая кластеризация, когда крупные кластеры дробятся на более мелкие, те в свою очередь дробятся еще более мелкие, и т.д. Такие задачи называются задачами таксономии. Результатом таксономии является не просто разбиение множества объектов на кластеры, а древовидна иерархическая структура. Вместо номера кластера объект характеризуется перечислением всех кластеров, которым он принадлежит, от большого до маленького. Классическим примером таксономии на основе сходства является систематизация живых существ, предложенная Карлом Линнеем в середине XVIII века.

Применение кластерного анализа в общем виде сводится к следующим этапам:

- Отбор выборки объектов для кластеризации.
- Определение множества переменных, по которым будут оцениваться объекты в выборке. При необходимости нормализация значений переменных.
- Вычисление значений меры сходства между объектами.
- Применение метода кластерного анализа для создания групп сходных объектов (кластеров).
- Представление результатов анализа.

После получения и анализа результатов возможна корректировка выбранной метрики и метода кластеризации до получения оптимального результата.

Итак, как же определить «сходство» объектов? Для начала нужно составить вектор характеристик для каждого объекта – как правило, это набор числовых значений, например, рост-вес человека. Однако существуют также алгоритмы, работающие с качественными (т.н. категорийными) характеристиками.

После того, как мы определили вектор характеристик, можно провести нормализацию, чтобы все компоненты давали одинаковый вклад при расчете «расстояния». В процессе нормализации все значения приводятся к некоторому диапазону, например, [-1, +1] или [0, 1].

Наконец, для каждой пары объектов измеряется «расстояние» между ними – степень сходства. Существует множество метрик, вот лишь основные из них:

- Евклидово расстояние. Наиболее распространенная функция расстояния. Представляет собой геометрическим расстоянием в многомерном пространстве:
- Квадрат евклидова расстояния. Применяется для придания большего веса более отдаленным друг от друга объектам.
- Расстояние городских кварталов (Манхэттенский расстояние)
 Это расстояние является средним разностей по координатам. В большинстве случаев эта мера расстояния приводит к таким же результатам, как и для обычного расстояния Евклида. Однако для этого мероприятия влияние отдельных больших разностей (выбросов) уменьшается (поэтому они не возводятся в квадрат).
- Расстояние Чебышева. Это расстояние может оказаться полезным, когда нужно определить два объекта как «различные», если они различаются по какой-либо одной координате.
- Степенное расстояние. Применяется в случае, когда необходимо увеличить или уменьшить вес, относящийся к размерности, для которой соответствующие объекты сильно отличаются.

Существует огромное количество методов кластеризации. К основным из них относятся:

Алгоритмы иерархической кластеризации. Среди алгоритмов иерархической кластеризации выделяются два основных типа: восходящие и нисходящие алгоритмы. Нисходящие алгоритмы работают по принципу «сверху-вниз»: в начале все объекты помещаются в один кластер, который затем разбивается на все более мелкие кластеры. Более распространены восходящие алгоритмы, которые в начале работы помещают каждый объект в отдельный кластер, а затем объединяют кластеры во все более крупные, пока все объекты выборки не будут содержаться в одном кластере. Таким образом строится система вложенных разбиения. Результаты таких алгоритмов обычно представляют в виде дерева – дендрограммы. Классический пример такого дерева – классификация животных и растений. Для вычисления расстояний между кластерами чаще всего пользуются двумя расстояниями: одиночной связью или полным связью. К недостатку иерархических алгоритмов можно отнести систему полных разбиений, которая может быть лишним в контексте решаемой задачи.

Эвристические графовые алгоритмы. Обширный класс алгоритмов кластеризации основан на представлении выборки в виде графа. Вершинам графа соответствуют объекты выборки, а ребрам – попарные расстояния между объектами $\rho_{ij} = \rho(x_i, x_j)$. Преимуществом графовых алгоритмов кластеризации является наглядность, относительная простота реализации, возможность вносить различные усовершенствования, опираясь на простые геометрические соображения.

Алгоритм выделения связанных компонент. В алгоритме выделения связанных компонент задаем входной параметр R и в графе удаляются все ребра, для которых «расстоянии» больше R. Соединенными остаются только наиболее близкие пары объектов. Смысл алгоритма заключается в том, чтобы подобрать такое значение R, из диапазона всех «расстояний», при котором граф «развалится» на несколько связных компонент. Полученные компоненты и является кластероми.

Алгоритмы квадратичной ошибки. Задачу кластеризации можно рассматривать как построение оптимального разбиения объектов на группы. При этом оптимальность может быть определена как требование минимизации среднеквадратической ошибки разбиения. Самым распространенным алгоритмом этой категории является метод k-средних [p]. Этот алгоритм строит заданное число кластеров, расположенных как можно дальше друг от друга.

Статистические методы основаны на предположении, что кластеры неплохо описываются некоторым семейством вероятностных распределений. Тогда задача кластеризации сводится к разделению смеси распределений по конечной выборке.

Кластеризация с частичным обучением. Алгоритмы Ет и k-means легко приспособить для решения задач кластеризации с частичным обучением (semi-supervised learning), когда для некоторых объектов x_i известны правильные классификации $y^*(x_i)$. На практике частичная классификация даже небольшого количества объектов существенно улучшает качество кластеризации.

Методы кластеризации при обработке медицинских изображений

Сегодня для проведения сегментации медицинских изображений применяют методы кластеризации. Эти методы можно разделить на два алгоритма: иерархический и неиерархический. Неиерархическая кластеризация заключается в разделении набора данных на определенное количество отдельных кластеров. Существует два подхода. Первый базируется на определении границ кластеров как наиболее плотных участков в многомерном пространстве исходных данных, то есть определении кластера там, где есть наибольшая «совокупность точек». Второй подход базируется на минимизации степени различия объектов.

Наиболее распространенным среди неиерархических методов является алгоритм *k*-средних [16-18].

В отличие от иерархических методов, которые не требуют предварительных предположений относительно числа кластеров, для возможности применения этого метода необходимо иметь гипотезу о вероятном количестве кластеров.

Алгоритм k-средних строит k кластеров, расположенных на возможно больших расстояниях друг от друга. Основной тип задач, которые решают алгоритм k-средних, — наличие предположений (гипотез) относительно числа кластеров, при этом они должны быть настолько разными, насколько это возможно. Выбор числа k может базироваться на результатах предыдущих исследований. Общая идея алгоритма k-средних это заданное фиксированное число kкластеров наблюдения, которое сопоставляется кластерам так, что средние в кластере (для всех переменных) максимально возможно отличаются друг от друга.

Алгоритм k-средних описывается таким образом. Берется начальное распределение объектов по кластерам. Затем выбирается число k, и на первом этапе эти точки считаются "центрами" кластеров. Каждому кластеру соответствует один центр.

Осуществляется выбор начальных Центроид, выбор *k*-наблюдений для максимизации начального расстояния; потом случайный выбор *k*-наблюдений и выбор первых *k*-наблюдений.

В результате каждый объект принадлежит определенному кластеру. После этого вычисляются центры кластеров, которыми затем и в дальнейшем вычисляются покоординатные средние кластеры. Объекты снова перераспределяются.

В качестве меры близости используется Евклидово расстояние:

$$\rho(x,y) = \|x-y\| = \sqrt{\sum_{p=1}^{n} (x_p - y_p)^2} .$$
(1)

Таким образом, рассматривается ряд наблюдений

$$(x^{(1)}, x^{(2)}, \dots, x^{(m)}), x^{(j)} \in \mathbb{R}^n$$
. (2)

2 3





Рис. 2 Пример работы алгоритма *k*-средних (*k*=2)

Метод *k*-средних разделяет *m* наблюдений на *k* групп (или кластеров) (k≤m), чтобы минимизировать суммарное квадратичное отклонение точек кластеров от центроид этих кластеров:

$$\min\left[\sum_{i=1}^{k}\sum_{x^{(j)}\in S_{i}}\left\|x^{(j)}-\mu_{i}\right\|^{2}\right],$$
(3)

где $x^{(j)} \in \mathbb{R}^n$, $\mu_i \in \mathbb{R}^n$. μ_i — центроид кластера j.

Центры полученных кластеров пересчитываются в соответствии с формулой,

$$\mu_i = \frac{1}{S_i} \sum_{x^{(j)} \in S_i} x^{(j)} , \qquad (4)$$

Процесс вычисления центров и перераспределения объектов продолжается до тех пор, пока не выполнено одно из условий: кластерные центры стабилизировались, то есть все наблюдения принадлежат кластеру, которому принадлежали к текущей итерации; или число итераций, равно максимальному числу итераций.

После получения результатов кластерного анализа методом k – средних следует проверить правильность кластеризации (то есть оценить, насколько кластеры отличаются друг от друга). Для этого рассчитываются средние значения для каждого кластера. При хорошей кластеризации должны быть получены средние, сильно отличаются для всех измерений или хотя бы большей их части.

Простоту использования; скорость использования; ясность и прозрачность алгоритма — всё это можно считать достоинством алгоритма k – средних, а недостатками алгоритма является то, что он слишком чувствителен к выбросам, которые могут искажать усреднение. Возможным решением этой проблемы является использование модификации алгоритма — алгоритм k – медианы; алгоритм может медленно работать на больших базах данных. Возможным решением данной проблемы является использование выборки данных.

В общем случае все этапы кластерного анализа взаимосвязаны, и решения, принятые на одном из них, определяют действия на последующих этапах – выборе метрики и метода стандартизации исходных данных; определении количества кластеров (для итеративного кластерного анализа).

По мнению многих специалистов, выбор метода кластеризации является решающим при определении формы и специфики кластеров.



Рис. 3 Сцинтиграфические изображения почек

Методы распознавания сцинтиграфических изображений.

Нами были проанализированы динамические сцинтиграфическая изображения почек. Все изображения представлены в стандарте DICOM. Сцинтиграфия почек это радиоизотопные исследования почек с помощью сцинтилляционных камер, которое осуществляется при использовании методик динамической, статической и скоростной сцинтиграфии. Для диагностики патологического состояния почки необходимо было разделить ее изображение на два сегмента – паренхиму и лоханку. Для распознавания сцинтиграфических изображений был применен метод кластерного анализа. Для применения метода кластеризации нами был проведен их анализ и отобраны более приемлемый для наших задач. Был сделан выбор между иерархическими и неиерархические методами. Выбрано иерархический метод кластеризации. Иерархические методы, в отличие от неиерархических, отказываются от определения числа кластеров, а строят полное дерево вложенных кластеров. Сложности иерархических методов кластеризации: ограничение объема набора данных; выбор меры близости; негибкость полу-



Рис. 4. Дендограма результата кластерного анализа

ченных классификаций. Преимущество этой группы методов по сравнению с неиерархические методами – их наглядность и возможность получить детальное представление о структуре данных. При использовании иерархических методов существует возможность достаточно легко идентифицировать выбросы в наборе данных и, в результате, повысить качество данных. Эта процедура лежит в основе двушагового алгоритма кластеризации. Такой набор данных в дальнейшем может быть использован для проведения неиерархические кластеризации. В этом случае нам было и легче и быстрее и точнее и более эффективно получить результат с применением иерархического метода.

Для начала анализа берем все изображения почки определенного пациента, полученные во время исследования и рассматриваем их как один объект (рис. 3).

В избранных изображениях, выделены две части почек – паренхима и лоханка. На каждую выделенную часть изображения данные о значении, максимум и минимум интенсивность и количество пикселей.

Все изображения были пересмотрены и проанализированы в стандарте DICOM. После этого были выбраны показатели, необходимые для анализа. В качестве показателей были выбраны значения и интенсивность пикселей в каждом из изображений.



Рис. 5. Расстояние связи в зависимости от шага кластеризации

Для этого класса исследований, нами было проведено изоморфное перевода задачи обработки медицинских изображений на язык кластерного анализа. Объектами являются геометрические пиксели изображения. Многомерным вектором признаков каждого объекта есть временная поведение пиксела, что фиксируется камерой в серии кадров.

Составляются таблицы динамики переменных и проводится кластерный анализ исходных данных. В агломеративного-иерархических методах, которые чаще используются в реальных биомедицинских исследованиях, сначала все объекты (наблюдение) рассматриваются как отдельные, самостоятельные кластеры, состоящие только из одного элемента. Если принять, что объем выборки равен N, то можно, используя определенные метрики, рассчитать расстояние между всеми возможными парами объектов. Таких расстояний будет N * N. Например, для 105 изображений будет рассчитан 105 * 105 = 11025 взаимных парных расстояний.

Для построения матрицы расстояний применяется евклидово расстояние. Матрица расстояний характеризует расстояния между объектами, каждый из которых на первом этапе представляет отдельный кластер. Тогда в результате анализа получаем 3 кластера: кластер 1 — C1-C4, кластер 2 — C2-C3, кластер 3 — C5-C6. Де-

ндограма результата кластерного анализа методом иерархической агломерации приведена на рис. 4.

В кластерах с большим номером объекты расположены ближе друг к другу. Это означает, что они раньше были объединены в одном кластере (рис. 4). Таким образом, паренхима и лоханка почки, составляли один кластер на первых шагах, разделяются на два различных кластера в дальнейшем.

В результате проведенных исследований были проанализированы различные методы кластеризации для их применения при обработке медицинских цифровых изображений в среде ГРИД. Был выбран иерархический метод кластеризации, который позволил сделать обработку сцинтиграфических изображений почек пациентов на предмет разделения паренхимы и лоханки. Показана его эффективность для проведения этой процедуры.

> Кластеризация динамических изображений на основе информационно-энтропийного подхода. Формализованная постановка задачи

Пусть дано априорно классифицированный набор пространственно-временных векторов одного динамического исследования органов $\{v_i^{(j)} \mid j = \overline{1, n}; i = \overline{1, N}\}$ на гамма-камере, где n – количество векторов, соответствующих пикселям снимке гамма-камеры, N – количество признаков распознавания, характеризующие яркость пикселя в разные моменты считывания, и алфавит классов $\{T_k^o \mid$ k = 1, K}, характеризующий тип зоны наблюдения. При этом класс является базовым и соответствует зоне интереса. Для зоны интереса задано алфавит пространственно-временных образов $\{\Phi_{c}^{o} \mid c = 1, C\}$, характеризующий функциональное состояние исследуемого органа человека и соответствующая априорно классифицирована учебная матрица типа объект-свойство $\{y_{c,i}^{(j)} \mid j=1, n_c; i=1, N; c=1, C\}$, где n_c – количество наблюдений с-го функционального состояния, С – количество функциональных состояний органа человека, диагностируется. При этом класс Φ_1^o является базовым и соответствует функциональному состоянию здорового органа.

Известна структура упорядоченного вектора параметров функционирования системы поддержки принятия решений (СППР):

$$g = <\delta_{T,i}, \delta_{\Phi,i}, x_m, d_m >,$$
(5)

где $\delta_{T,i}, \delta_{\Phi,i}$ – параметры ширины кодирующего поля контрольных допусков для *i*-го признака классификаторов зоны наблюдения и функционального состояния органа соответственно; x_m – двоичный эталонный вектор класса $X_m^o \in \{T_k^o\} \cup \{\Phi_c^o\}$, который определяет геометрический центр его гиперсферического контейнера; $X_m^o \in \{T_k^o\} \cup \{\Phi_c^o\}$ - кодовый радиус контейнера класса, построенный в радиальном базисе бинарного пространства признаков.

При этом заданы следующие ограничения: $d(x_m \oplus x_{cm}) > d_m$, где $d(x_m \oplus x_{cm})$ – кодовое расстояние между двоичным эталонным (усредненным) вектором класса и двоичным эталонным (усредненным) вектором соседнего с ним класса X_{cm}^o ; $\delta_{T,i} \in [0; \delta_{\max}]$, $\delta_{\Phi,i} \in [0; \delta_{\max}]$, где δ_{\max} – предельное значение ширины поля контрольных допусков.

Необходимо в процессе обучения СППР определить оптимальные значения координат вектора параметров функционирования g^* (5), обеспечивающие максимальное значение усредненного по алфавиту классов распознавания информационного критерия функциональной эффективности (КФЕ) СППР

$$\overline{E} = \frac{1}{M} \sum_{m=1}^{M} \max_{G_E} \{E_m\},\tag{6}$$

где E_m — информационный критерий функциональной эффективности обучения СППР распознавать реализации класса $X_m^o \in \{T_k^o\} \cup \{\Phi_c^o\}; G_E$ — допустимая область определения функции КФЕ.

Необходимо в рабочем режиме СППР принять решение о принадлежности экзаменационных реализаций к одному из классов алфавита зон наблюдения $\{T_k^0\}$ и о соответствии экзаменационных реализаций, отнесенных к зоне интереса T_1^o , одному из классов алфавита функциональных состояний диагностированного органа. Алгоритм функционирования системы поддержки принятия решений

Информационно-экстремальное машинное обучение заключается в трансформации априорно-нечеткого пространства первичных признаков распознавания в четкую эквивалентность классов, контейнеры которых восстанавливаются в радиальном базисе вторичных признаков двоичного пространства Хемминга. Рассмотрим реализацию базового алгоритма информационно-экстремального обучения [9], для оптимизации геометрических параметров разбиения пространства признаков.

Входной информацией для алгоритма является массив реализаций образа $\{y_{m,i}^{(j)} \mid j = 1, n_m; i = 1, N; m = 1, M\}$ и вектор параметров рецептивных полей $\{\delta_{\Omega,i} \mid i = 1, N\}$.

Рассмотрим этапы реализации алгоритма:

1. Переход к бинарному пространству признаков путем сравнения значений первичных признаков распознавания с верхним и нижним пределами рецептивного поля:

$$\boldsymbol{A}_{H,i} = \overline{\boldsymbol{y}_{1,i}} - \boldsymbol{\delta}_{\Phi,i} , \ \boldsymbol{A}_{B,i} = \overline{\boldsymbol{y}_{1,i}} + \boldsymbol{\delta}_{\Phi,i}$$
(7)

где $y_{1,i}$ – среднее выборочное значение i-й признака в базовом классе X_1^0 .

2. Формирование бинарной учебной матрицы, элементы которой определяются по правилу

$$x_{m,i}^{(j)} = \begin{cases} 1, & if \quad A_{H,i} \le y_{m,i}^{(j)} \le A_{B,i}; \\ 0, & else. \end{cases}$$
(8)

3. Формирование массива эталонных двоичных векторов $\{x_{m,i} \mid m = \overline{1, M}, i = \overline{1, N}\}$, элементы которого вычисляются по правилу

$$x_{m,i} = \begin{cases} 1, & if \quad \frac{1}{n} \sum_{j=1}^{n} x_{m,i}^{(j)} > 0,5; \\ 0, & else, \end{cases}$$
(9)

4. Разбивка множества эталонных векторов на пары ближайших соседей $\Re_m^{[2]} = < x_m, x_l >$, где $x_l -$ эталонный вектор соседнего класса X_l^o , по этому алгоритму:

- а) структурируется множество эталонных векторов, начиная с вектора x_1 базового класса X_1° ;
- б) строится матрица кодовых расстояний между эталонными векторами размерности М×М
- в) для каждой строки матрицы кодовых расстояний находится минимальный элемент который принадлежит столбцу вектора ближайшего к вектору, который определяет сроку. При наличии нескольких одинаковых минимальных элементов выбирается любой из них, поскольку они являются равноправными;
- г) формируется структурированное множество элементов парного разбиения $\{\Re_m^{[2]} \mid m = \overline{1, M}\}$, которое задает план обучения.

5. Оптимизация кодовой расстояния d_m происходит в процессе нахождения максимума информационного критерия в рабочей области определения функции: $E_m^* = \max_{G_d} E_m$, где $G_d = \{0, 1, ..., d < d(x_m \oplus x_{cm})\}$ – множество радиусов концентрических гиперсфер, центр которых определяется вершиной $x_m \in X_m^o$.

В случае априорно неклассифицированной учебной матрицы $\{v_i^{(j)} \mid j = \overline{1, n}; i = \overline{1, N}\}$, которую необходимо разбить на классы эквивалентности $\{T_k^o \mid k = \overline{1, K}\}$ формирование и оптимизацию решающих правил предложено осуществлять в процессе информационно-экстремального кластер-анализа. При этом границы кодирующего поля контрольных допусков для *i*-го признака вычисляется по формулам:

$$\boldsymbol{A}_{H,i} = \boldsymbol{v}_{\max,i} - \boldsymbol{\delta}_{T,i}, \ \boldsymbol{A}_{B,i} = \boldsymbol{v}_{\max,i}$$
(10)

где $v_{\max,i}$ – максимальное значение і-го признака учебной матрицы $\{v_i^{(j)}\}$.

Рассмотрим основные этапы реализации базового алгоритма информационно-экстремальной кластеризации диагностических данных на К кластеров. 1. Формирование множества двоичных векторов $\{z^{(j)} \mid j = \overline{1,r}\}$, являющихся потенциальными начальными центрами контейнеров, путем копирования двоичной матрицы $\{x_i^{(j)}\}$, удаления в ней одинаковых векторов и сортировки остальных векторов в порядке увеличения количества единичных координат.

2. Формирование начальных центров контейнеров $\{x_k \mid k = \overline{1,K}\}$ по правилу

$$x_{k} = \begin{cases} z^{(1)}, k = 1; \\ z^{(r-[k-1])/[K-1])}, 1 < k < K; \\ z^{(r)}, k = K. \end{cases}$$
(11)

3. Кластер-анализ двоичной матрицы класса $\{x_i^{(j)}\}$ по алгоритму К-средних [r] с использованием дистанционной меры Хемминга и формирование множества оптимальных центров кластеров x_m^* .

4. Оптимизация радиуса контейнеров осуществляется по итерационной процедуре $d_k^* = \arg \max_{G_d \cap G_n} \{\overline{E}(d_k)\}$, где G_n — область допустимых значений количества охваченных контейнерами векторов-реализаций (количество векторов в контейнере должна быть больше 40, а общее количество охваченных контейнерами векторов должна быть больше 90% от общего объема векторов).

Итерационная процедура оптимизации упорядоченного вектора параметров поля контрольных допусков $<\delta_1, \delta_2, ..., \delta_i, ..., \delta_{N-1}, \delta_N >$ для признаков распознавания реализует механизм адаптивного двоичного кодирования признаков и заключается в максимизации усредненного по алфавиту классов ($\{\Phi_c^o\}$ или $\{T_k^o\}$) информационного критерия \overline{E}

$$<\delta_i^*>= \arg\max_{G_\delta} \left\{ \max_{G_d \cap G_E} \{\overline{E}\} \right\},$$
 (12)

где G_{δ} — область допустимых значений параметра поля контрольных допусков на значение признаков распознавания.

Таким образом, оптимизация вектора параметров полей контрольных допусков $< \delta_i >$, которые влияют на функциональную эф-

фективность СППР, является задачей поиска экстремума функции КФЕ в гиперпространстве решений. Среди алгоритмов многомерной оптимизации в задачах синтеза интеллектуальных СППР хорошо себя зарекомендовали методы эволюционного программирования, такие как алгоритмы роя частиц, летучих мышей, муравьиных или бактериальных колоний, пчелиной семьи, иммунной системы и другие, не требующие начальных приближений и защищены от «зависания »в локальных экстремума. При этом алгоритм роя частиц в отличие от других алгоритмов, основанных на имитации механизмов природы, отличается простотой реализации и интерпретации [19].

Алгоритм роя частиц на начальном этапе обеспечивает равномерное исследование всего заданного пространства решений, а на более позднем — быструю сходимость к лучшему из найденных решений. При этом участие конечного числа частиц в процессе поиска, а также обмена информацией между ними гарантируют защищенность алгоритма от преждевременного «зависания» в локальных экстремума. Благодаря случайности распределения частиц и их хаотичности в движении появляется очень большая вероятность найти оптимальное решение за небольшое количнство итераций. Элемент случайности в процессе поиска обеспечивается параметрами алгоритма, значения которых генерируются случайным образом из заданного диапазона в соответствии с нормальным законом распределения U (0,1).

Эффективность каждой частицы, то есть ее близость к глобальному оптимуму, измеряется с помощью предустановленной фитнес-функции, роль которой в данном случае выполняет функции КФЕ. Каждая частица сохраняет следующую информацию: P_j — текущая позиция j-й частицы; V_j — текущая скорость частицы $Pbest_j$ — лучшая персональная позиция частицы. Лучшая персональная позиция в которой значение фиттинговой функции для частицы было максимальным на текущий момент времени. Кроме этого, с целью поиска глобального

экстремума фитнес-функции лучшая частица ищется во всем рое, и ее позиция обозначается *Gbest*.

Рассмотрим основные шаги реализации алгоритма роя частиц для оптимизации параметра полей контрольных допусков (12) на значение признаков информационно-экстремального классификатора.

1. Инициализация роя:

- а) инициализация количества частиц;
- б) инициализация размерности каждой частицы, равной размерности пространства признаков N, и инициализация границ изменения параметра δ_i
- в) инициализация начальных позиций частиц $P_i(0) \coloneqq \delta_{max} U(0,1)$
- г) инициализация начальных скоростей частиц $V_i(0) \coloneqq 0$
- д) инициализация максимальной скорости частиц $V_{\max,i}$
- е) инициализация весовых коэффициентов для формулы скорости, то есть веса инерции w и констант ускорения c_1 и c_2 .
 - 2. Инкремент номера итерации: k := k + 1
 - 3. Инкремент номера частицы: j := j + 1
 - 4. Инкремент номера координаты в позиции: i := i + 1

5. Расчет нового состояния частицы:

а) расчет *i* - й компоненты скорости для *j* - й частицы по правилам

$$\begin{split} V_{j,i}(k+1) &\coloneqq wV_{j,i}(k) + c_1r_{1,i}(k) * [Pbest_{j,i}(k) - P_{j,i}(k)] + \\ &+ c_2r_2(k) * [Gbest_j - P_{j,i}(k)] \end{split}$$

$$V_{j,i}(k+1) \coloneqq egin{cases} V_{j,i}(k+1) & if \quad V_{j,i}(k+1) < V_{\max,i}, \ V_{\max,i} & else \quad V_{j,i}(k+1) \geq V_{\max,i}, \end{cases}$$

где $r_1(k) = U(0,1), r_2(k) = U(0,1);$

б) обновление позиции частицы

$$P_j(k+1) \coloneqq P_j(k) + V_j(k+1);$$

 в) проверка пересечения границ пространства и изменение скорости в случае пересечения по правилу

$$V_{\boldsymbol{j},\boldsymbol{i}}(\boldsymbol{k+1})\coloneqq V_{\boldsymbol{j},\boldsymbol{i}}(\boldsymbol{k+1})\boldsymbol{\alpha}\;,$$

где α — параметр типа границы пространства ($\alpha = 0$ — поглощающая граница ; $\alpha = 1$ — прозрачная $\alpha = -1$ – зеркальная; $\alpha = -U(0, 1)$ – демпфирующая);

г) запуск базового алгоритма обучения и вычисления целевой функции

$$J_{j}(k+1)\coloneqq egin{cases} \overline{E} & if \quad P_{j}\in G_{E}, \ 0 & else; \end{cases}$$

д) обновление значений лучшей персональной и глобальной позиций

$$Pbest_j(k+1) \coloneqq egin{cases} Pbest_j(k) & if \quad J(P_j(k+1)) \leq J(Pbest_j(k)), \ P_j(k+1) & else; \end{cases}$$

$$Gbest(k+1) \coloneqq \arg \max\{J(Pbest_i(k+1))\}$$

6. Проверка условия остановки: если ($k < k \max$) \land ($J(Gbest(k + 1) < J \max$), где $k \max$ заданное максимальное количество итераций, $J \max$ предельное значение фитнес-функции, то переход к шагу 2, иначе остановка по достижению результата.

В качестве критерия эффективности обучения классификатора рассматривается модификация информационной меры Кульбака [10], в которой отношение правдоподобия представлены в виде отношения полной вероятности правильного принятия решений P_{true} к полной вероятности ошибочного принятия решений P_{false} . Для случая двух альтернативных и ровно вероятных гипотез мера Кульбака имеет вид:

$$E_m = \left[P_{true,m} - P_{false,m}
ight] \log_2 rac{P_{true,m}}{P_{false,m}} =$$

$$= \begin{vmatrix} P_{true,m} = 0, 5D_{1,m} + 0, 5D_{2,m} \\ P_{false,m} = 0, 5\alpha_m + 0, 5\beta_m \\ \alpha_m = 1 - D_{1,m}; D_{2,m} = 1 - \beta_m \end{vmatrix} = \\ = \left[D_{1,m} - \beta_m \right] * \log_2 \left(\frac{1 + \left[D_{1,m} - \beta_m \right]}{1 - \left[D_{1,m} - \beta_m \right]} \right),$$
(13)

где $D_{1,m}$ – первая достоверность для класса X_m^0 ; $D_{2,m}$ – вторая достоверность;

α_m – ошибка второго рода;

β_… – ошибка второго рода;

n – количество реализаций в обучающей выборке класса X_m^0 .

При расчете оценок характеристик точности контейнера класса X_m^0 согласно принципу k ближайших «соседей» соседними можно считать набор реализаций, ближайших к эталонному вектору x_m

$$\{x_c^{(j)} \mid j = \overline{\mathbf{1,n}}\} \in \left[\bigcup_{c=1}^M X_c^o\right] \setminus X_m^o,$$

Рабочая (допустимая) область определения функции информационного критерия ограничено неравенствами $D_{1,m} \ge 0.5$, $D_{2,m} \ge 0.5$ и $n \ge n_{\min}$, где n_{\min} — минимально допустимый объем векторов реалиазаций в классе.

Нормпированную модимфикацию критерия (13) представим в виде

$$E_m = \frac{E_m}{E_{\max}} \tag{14}$$

где $E_{_{\max}}$ – значение критерия при $D_{_{1,m}}=1$ и $\beta_{_m}=0$.

Алгоритмы экзамена в рамках IEI-технологии могут иметь разную структуру в зависимости от распределения реализаций образа, распознаются. Обязательным условием их реализации является обеспечение равных структурированности и параметров алгоритма формирования как для учебной, так и для экзаменационной матриц. При наличии четкого разбиения, которое было создано на этапе обучения, алгоритм экзамена в рамках IEI -технологии имеет следующие входные данные: M — количество классов, которые СППР обучена распознавать; $\{x_m^* \mid m = \overline{1,M}\}$ – массив эталонных двоичных векторов-реализаций образа, которые определяют центры соответствующих оптимальных контейнеров классов распознавания, построенных на этапе обучения; $\{d_m^*\}$ – массив оптимальных радиусов построенных на этапе обучения соответствующих контейнеров; $\{x^{(j)} \mid j = \overline{1,n}\}$ – массив двоичных векторов-реализаций распознаваемого образа; $\{\delta_i^* \mid i = \overline{1,N}\}$ – оптимальный вектор параметров поля контрольных допусков на признаки распознавания, который определен на этапе обучения.

Алгоритм экзамена в рамках IEI-технологии основывается на анализе значений функции принадлежности, которая для гиперсферического контейнера класса распознавания X_m^o имеет вид:

$$\mu_m = \mathbf{1} - \frac{d(\mathbf{x}_m^* \oplus \mathbf{x}^{(j)})}{d_m^*} \tag{15}$$

и вычисляется для каждой распознаваемой реализации.

Рассмотрим шаги реализации алгоритма экзамена при нечетком разбиении, соответствующее общем случае:

1. Формирование счетчика классов распознавания: $m \coloneqq m + 1$.

2. Формирование счетчика числа распознаваемых реализаций: j := j + 1.

3. Расчет кодового расстояния $d(x_m^* \oplus x^{(j)})$.

4. Вычисление функции принадлежности.

- 5. Сравнение: если $j \le n$, то выполняется шаг 2, иначе шаг 6.
- 6. Сравнение: если $m \le M$, то выполняется шаг 1, иначе шаг 7.

7. Определение класса X_m^o , к которому относится реализация образа, например, при условии $\bar{\mu}_m^* = \max_{\{m\}} \bar{\mu}_m$, где $\bar{\mu}_m = \frac{1}{n} \sum_{j=1}^n \mu_{m,j}$ — усредненное значение функций принадлежности для реализа-



Рис. 6. Кадры сцинтиграммы в разные моменты считывания после введения радиофармпрепарата: а -10 минут, б-15 минут, в-20 минут.

ций класса X_m^o , или выдача сообщения: «Класс не определен», если $\bar{\mu}_m^* \leq c$. Здесь с пороговое значение.

Таким образом, машинное обучение СППР в рамках IEI технологии заключается в реализации итерационной процедуры нахождения глобального максимума информационного КФЕ в рабочей области определения его функции. При этом принятие решений происходит в процессе нахождения функции принадлежности, имеет геометрический смысл и невысокую вычислительную сложность.

Результаты моделирования

Реализация предложенного алгоритма обучения СППР осуществлялась по данным, накопленные в Грид-хранилище медицинских изображений в Институте сцинтилляционных материалов НАН Украины и представлены в формате DICOM (Digital Imaging and COmmunications in Medicine) [8]. На рис. 6 показано несколько кадров из серии сцинтиграммы динамического исследования почек одного из пациентов.

Каждый пиксель сцинтиграммы характеризуется состоянием счетчика импульсов (сцинтилляций) в соответствующей координате матрицы гамма-камеры. Серия сцинтиграммы образует для каждого пикселя кривую «активность-время», которая имеет различный



Рис. 7. Динамика изменения усредненного нормированного информационного КФЕ в процессе роевой оптимизации полей контрольных допусков: а — классификатор зон наблюдения; б — классификатор функционального состояния почки

вид для различных органов и тканей и зависит от их функционального состояния. С целью исследования раздельной и суммарной функциональной способности почек необходимо выделить области обеих почек и исследовать кривые «активность-время». Для этого пиксели матрицы гамма-камеры с разрешением 64×64 рассматриваются как априорно неклассифицированное множество векторовреализаций объемом *n* = 4096, которые необходимо автоматически разделить на зоны наблюдения. Поскольку запись сцинтиграммы осуществляется в течение 20 минут в режиме 2 кадра в минуту, то мощность словаря признаков, которые участвуют в классификационном анализе, составляет N = 40. В данном эксперименте мощность алфавита классов при сегментации сцинтиграммы на зоны наблюдения представляет K = 3. Области левой и правой почек считаются зонами интереса и соответствуют классу T_1^o . Класс T_2^o отвечает другим кровенаполненным тканям, а класс T_3^o — класс зоны, условно принятой за фоновую.

Для поддержки врачебных решений кривую активности в зоне интереса необходимо представить в виде вектора реализации функционального состояния органа и автоматически классифици-



Рис. 8. Зависимость нормированного информационного КФЕ от радиуса контейнера классов зон наблюдения: а – T_1^o ; б – T_2^o ; в – T_3^o

ровать. С этой целью по архивным медицинским изображениями и соответствующими экспертными заключениями врачей было сформировано обучающую выборку классов функционального состояния в зоне левой почки.

Объем выборки каждого класса равен $n_c = 100$. Мощность заданного алфавита классов функционального состояния почки составляет C = 3. При этом класс Φ_1^o соответствует нормальному функционированию почки, класс Φ_2^o характеризует поражения почечной паренхимы, класс Φ_2^o — нарушение уродинамики.

На рис. 7 показана динамика изменения информационного КФЕ (15) в процессе роевой оптимизации полей контрольных допусков по значениям признаков распознавания для классификатора зон наблюдения и классификатора функционального состояния почки (штрихованный участок здесь и далее обозначает рабочую область определения функции КФЕ). В роевом алгоритме оптимизации использованы прозрачные границы ($\alpha = 1$), при пересечении которых КФЕ не вычисляется, что приводит к возвращению частицы в пространство поиска. При этом скорость частиц ограничена максимальным значением $V_{\max,i} = 2$, масса инерции составляет


Рис. 9. Зависимость нормированного информационного КФЕ от радиуса контейнера классов функционального состояния почки: а – Φ_1^o ; б – Φ_2^o ; в – Φ_3^o



Рис. 10. Результат сегментации и классификации: а – зоны наблюдения; б – функциональное состояние левой почки

w = 0,95, а константы ускорения инициализированы единичным значением $c_1 = c_2 = 1.0$, что соответствует отсутствию ускорения.

Анализ рис. 7 показывает, что удалось получить безошибочные по матрицам обучения решающие правила. При этом процесс роевой оптимизации контрольных допусков на значение признаков распознавания для классификатора зон наблюдения длился 51 итерацию, а для классификатора функционального состояния почки — 14 итераций. Процесс последовательной оптимизации геометрических параметров разбиения пространства признаков на классы эквивалентности при оптимальной системе контрольных допусков по значению признаков распознавания проиллюстрировано на рис 8 и рис. 9.

Анализ рис. 8 показывает, что оптимальные значения радиусов гиперсферических контейнеров классов T_1^o , T_2^o и T_3^o соответственно равны: $d_1 = d_2 = d_3 = 7$ (здесь и далее в кодовых единицах). Анализ рис. 9 показывает, что оптимальные значения радиусов гиперсферических контейнеров классов Φ_1^o , Φ_2^o и Φ_3^o соответственно равны: $d_1 = 4$, $d_2 = 10$ и $d_3 = 6$ (в кодовых единицах).

На рис. 10а показан результат автоматической сегментации сцинтиграммы на три зоны наблюдения. При этом штриховая линия описывает правило выбора зон наблюдения для диагностики, разграничивая зоны левой и правой почек. На рис. 10б показан результат распознавания функционального состояния левой почки.

Анализ рис. 10а показывает, что в процессе сегментации удалось визуализировать зоны нахождения почек, однако небольшая мощность алфавита классов не позволила выделить зону лоханки, корково-мозговой области и верхнего, среднего и нижнего сегментов почек. Рис. 10б показывает, что кривая «активность-время» для левой почки по результатам распознавания соответствует нормальному состоянию без видимых изменений и нарушений функции почек.

Таким образом, в процессе информационно-экстремального машинного обучения были получено безошибочные по матрице обучения решающие правила для автоматической классификации зон интереса и распознавания их функционального состояния для динамического радионуклидного исследования почек.

Выводы

Задача по оконтуриванию динамических медицинских изображений сформулирована в терминах кластерного анализа. Проведено исследование кластерных методом для решения таких задач. Для анализа динамических сцинтиграфических исследования наиболее перспективными оказались древовидный иерархический метод, метод К-средних и информационно-экстремальные методы.

В рамках информационно-экстремальной интеллектуальной технологии синтезированы безошибочные по учебной матрицей и вычислительно эффективные решающие правила для поддержки врачебных решений в задачах динамической радионуклидной диагностики, что позволяет уменьшить трудоемкость экспертной обработки сцинтиграфических изображений, повысить точность диагностики, пропускную способность гамма-камеры и доступность радионуклидного исследования для пациентов.

По результатам моделирования отметим необходимость увеличения алфавита классов зон интереса при автоматической сегментации сцинтиграммы с целью получения более глубокого и детального анализа. Кроме того стоит исследовать классификацию функционального состояния почек при их одновременном рассмотрении.

Литература:

- 1. Сиваченко Т.П., Мечев Д.С. и др. Руководство по ядерной медицине. К.: Вища школа, 1991.
- Лишманов Ю.Б. Радионуклидная диагностика для практикующих врачей / Ю.Б. Лишманов, В.И. Чернов. – Томск : SST. – 2004. – 394c.
- Юдин А.Л. Радионуклидная диагностика: Учебное пособие для студентов медецинских вузов / А.Л. Юдин. – М.: Издательский дом "Русский врач". – 2012. – 96 с.
- Suapang P. The estimation of GFR and ERPF using adaptive edge-based active contour for the segmentation of structures in dynamic renal scintigraphy / P. Suapang, K. Dejhan, S. Yimman // International Journal of Innovative Computing, Information and Control. – 2015. – Vol.11, No.1. – P.87-103.
- 5. Stehl D. Automatic Compartment Modelling and Segmentation for Dynamical Renal Scintigraphies / D. Stehl, K. Estrum, N.C.

Overgaard, M. Landgren1, K. Sjustrand, L. Edenbrandt // SCIA. – 2011. – Berlin-Heidelberg : Springer-Verlag. – P. 557–568.

- Hamrouni K. Two Methods for Analysis of Dynamic Scintigraphic Images of the Heart / K. Hamrouni, N. Khlifa // The International Arab Journal of Information Technology. – 2006. – Vol.3, No.2. – P. 118-125.
- Zaidi H. Quantitative Analysis in Nuclear Medicine Imaging / Habib Zaidi. – New York, USA : Springer Science & Business Media Inc. – 2006. – 592 p.
- Šmídl V. Bayesian Blind Separation and Deconvolution of Dynamic Image Sequences Using Sparsity Priors / Ondrej Tichý, Václav Šmídl //IEEE TRANSACTIONS ON MEDICAL IMAGING. – V.34, N.1. – 2015. – P. 258-266.
- Кнышов Г.В. Создание и внедрение Грид-системы в лечебно-диагностическое кардиохирургическое отделение / Г.В. Кнышов, А.С. Коваленко, Е.А. Настенко, С.О. Сиромаха, А.В. Демин, С.Я. Свистунов, А.А. Пезенцали, А.В. Яковенко, О.А. Романюк // Международная научно-практическая конференция «Информационные технологии в неврологии, психиатрии, эпилептологии и медицинской статистике». – 2013. – Киев, Украина : КиТ. – С.45-53.
- Довбиш А.С. Основи проектування інтелектуальних систем / А.С. Довбиш. – Суми : СумДУ. – 2009. – 171 с.
- Moskalenko V.V. Information-Extreme Algorithm for Optimizing Parameters of Hyperellipsoidal Containers of Recognition Classes / A.S. Dovbysh, N.N. Budnyk, V.V. Moskalenko // Journal of automation and information sciences. - New York : Begell House Inc. - 2012. - V.44, I.10. - Pp. 35-44.
- Баранник С.В. Використання грід-сервісів віртуальної організації MedGrid для зберігання медичних зображень / Дьомін О.В., Бараннік С.В., Харюк О.О., Чергінець А.В. — Український радіологічний журнал 2015 т. XXIII, вип. 2.
- 13. Гектин А.В. Медицинские гамма-камеры тенденции и динамика развития / А.В. Гектин, А.В. Демин, В.Ю. Педаш //

Сцинтилляционные материалы. Получение, свойства, применение. Сборник под редакцией Б.В. Гринёва – Харьков: «Институт монокристаллов», 2007. 416 с. С 372-398.

- 14. Гринев Б.В. Гамма-камера: инструмент диагностики в ядерной медицине, создание и разработка нормативной документации/ Гринев Б.В., Гурджиян Н.Р., Демин А.В., Любинский В.Р., Молчанова Н.И., Фенько В.В. — Харьков: «ИСМА» Тенденции развития сцинтилляционной техники. 2013.
- Педаш В.Ю. Современные тенденции в разработке ОФЕКТ систем / В.Ю. Педаш, А.В. Демин — Харьков: «ИСМА»Сцинтилляционные материалы. Инженерия, устройства, применение. 2011
- S.M. Savaresi, D. Boley. A comparative analysis on the bisecting K-means and the PDDP clustering algorithms. // Intelligent Data Analysis, 8(4):345–362, 2004. (http://www-users.cs.umn. edu/~boley/publications/papers/savaresi04.pdf)
- P. Cimiano, A. Hotho, S. Staab. Comparing Conceptual, Partitional and Agglomerative Clustering for Learning Taxonomies from Text. // ECAI2004, Proceedings of the 16th European Conference on Artificial Intelligence, IOS Press, Amsterdam, 2004, pp.435-439. (http://www.frontiersinai.com/ecai/ecai2004/ecai04/pdf/ p0435.pdf)
- 18. Xu R. Clustering / R. Xu, C.D. Wunsch II. Canada : IEEE Press, John Wiley & Sons. – 2009. – 358 p.
- Вершовский Е.А. Роевой алгоритм оптимизации в задаче кластеризации мультиспектрального снимка / Е.А. Вершовский // Известия ЮФУ. Технические науки. – 2010. – г. Ростовна-Дону, РФ : Известия ЮФУ. – С. 102-107.

ИССЛЕДОВАНИЕ ВОЗМОЖНОСТИ ПРИМЕНЕНИЯ ПОВЕРОЧНОЙ УСТАНОВКИ НЕЙТРОННОГО ИЗЛУЧЕНИЯ, КАК ИСТОЧНИКА ГАММА-КВАНТОВ С ЭНЕРГИЯМИ ДО 10 МЭВ ДЛЯ КАЛИБРОВКИ СПЕКТРОМЕТРОВ

Д.И.Комар¹, Р.В. Лукашевич¹, С.А.Кутень²

¹Научно-производственное унитарное предприятие «АТОМТЕХ», г. Минск, Республика Беларусь ²Институт ядерных проблем БГУ, г. Минск, Республика Беларусь

Введение

Существует необходимость в калибровке спектрометрических и дозиметрических приборов до 7 МэВ и до 10 МэВ. Для корректной калибровки необходимо наличие в эталонном спектре излучения одиночных линий с известной энергией. При калибровке до 3 МэВ калибровка может осуществляется с использованием набора радионуклидных источников, например, Cs-137, Am-241, Co-60 и Ra-226. Гамма кванты с энергиями более 3 МэВ могут быть получены в результате радиационного захвата нейтрона ядрами мишени (n, γ) .

Сечение реакции радиационного захвата нейтронов ядрами мишени возрастает с уменьшением энергии нейтронов. Быстрые нейтроны от радионуклидных источников нейтронов могут быть замедлены до тепловых энергий при помощи водородосодержащих замедлителей (полиэтилен, парафин, вода) и направлены на мишень. Таким образом, простейший источник мгновенного захватного гамма-излучения должен состоять из источника быстрых нейтронов, замедлителя нейтронов и облучаемой тепловыми нейтронами мишени. При проектировании такого источника необходимо учитывать, что в спектре гамма-излучения будут присутствовать характеристические линии захватного излучения от материалов замедлителя, от конструкционных материалов, от элементов биологической защиты источника, от стен помещения и воздуха. Такие гамма-линии могут накладываться на эталонные линии от мишени и ухудшать "качество" излучения проектируемого источника, в связи с чем материалы необходимо подбирать с наименьшими сечениями радиационного захвата нейтронов и с характеристическими линиями, значительно отличающимися по энергии от линий мишени.

Так как энергия гамма-излучения при радиационном захвате соответствует переходам между энергетическими уровнями ядра мишени, то каждый материал будет обладать своим уникальным набором энергетических линий [1]. Для калибровки спектрометров необходимо, чтобы материал мишени имел набор одиночных линий в широком диапазоне энергий с достаточно большими сечениями захвата нейтронов. Для калибровки по энергии до 7 МэВ в качестве мишени можно использовать титан, а по энергии до 10 МэВ — никель [2, 3].

К настоящему времени известны примеры построения источника захватного гамма-излучения на основе ²⁵²Сf и Am-Be-источников нейтронного излучения [4, 5].

Целью данного исследования является экспериментальная и теоретическая оценка возможности использования стандартной геометрии тепловых нейтронов поверочной установки нейтронного излучения УПН-АТ140 с ²³⁸Ри-Ве источником нейтронов (типа ИБН-8-6) и набора мишеней, как источника гамма-излучения с энергиями до 10 МэВ для поверки и калибровки спектрометров и дозиметров гамма-излучения в широком диапазоне энергий.

Материалы и методы исследования

Интересной представляется возможность использования радионуклидных источников быстрых нейтронов для создания компактного лабораторного источника захватного гамма-излучения со стационарным во времени полем. Поток быстрых нейтронов от радионуклидного источника (²³⁸Pu-Be, ²⁵²Cf, ²⁴¹Am-Be) замедляется до тепловых энергий в полиэтилене и направляется на мишень. При таком подходе простейший источник захватного излучения состоит из источника быстрых нейтронов, замедлителя и мишени.

Установка поверочная нейтронного излучения УПН-АТ140, разработанная научно-производственным унитарным предприятием "ATOMTEX", предназначена для поверки дозиметров нейтронного излучения по амбиентному эквиваленту мощности дозы нейтронного излучения и радиометров нейтронного излучения по плотности потока быстрых нейтронов в стандартном поле нейтронного излучения источника ²³⁸Pu-Be.

Контейнер-коллиматор установки выполнен из борированного полиэтилена (5% содержание бора) и размещается в кожухе из алюминия с кадмиевой защитой. В контейнер-коллиматор устанавливаются специальные вставки, отвечающие геометрии быстрых или геометрии тепловых нейтронов. Вставка для геометрии быстрых или нейтронов представляет собой коллиматор из борированного полиэтилена с каналом в форме конуса. Тепловая вставка выполнена целиком из полиэтилена с воздушными цилиндрическими каналами для уменьшения альбедо нейтронов в направлении пучка.

В качестве мишеней должны применятся материалы, которые имеют в своем спектре захватного гамма-излучения отдельные линии с высоким выходом гамма-квантов. Согласно материалам по сечениям радиационного захвата нейтронов, самый высокий выход гамма-излучения с энергией 5-7 МэВ у титана, а с энергией 7-9 МэВ у никеля (табл.1) [6, 7].

Были изготовлены мишени в форме дисков (
 $d{=}300$ мм) из титана (Плита ВТ 1-0 ГОСТ 23755-79) толщиной 15 мм и никеля (Никель

Тит	ган	Никель		
Энергия фотонов, МэВ	нергия фотонов, МэВ Число фотонов на 100 захватов нейтронов		Число фотонов на 100 захватов нейтронов	
0,342 26,3		0,283	3,3	
1,381	69,1	0,465	13	
1,498	4,1	0,878	3,9	
1,586	8,9	6,581	2,3	
1,762	5,6	6,837	10,8	
4,882	5,2	7,537	4,5	
4,869	3,6	7,819	8,2	
6,418	30,1	8,121	3,1	
6,557	4,7	8,533	17	
6,761	24,2	8,999	37,7	

Таблица 1. Выход основных гамма-линий радиационного захвата нейтронов в титане и никеле [6]

Н-1 ГОСТ 849-97) толщиной 10 мм. Диаметр дисков соответствовал диаметру выходного канала геометрии тепловых нейтронов.

Для инструментального обеспечения эксперимента на УП "ATOMTEX" был разработан специализированный спектрометрический блок детектирования на основе NaI(Tl)-детектора размерами 63Ч160мм с нелинейной характеристикой преобразования каналэнергия в диапазоне до 10 МэВ с числом каналов АЦП, равным 1024.

Результаты и их обсуждение

Получены результаты с мишенями из титана, никеля, железа и без мишени от открытого ²³⁸Pu-Be–источника нейтронов. Расстояние между центрами кристалла NaI блока детектирования и источника нейтронов равнялось 700 мм (рис. 1). При использовании мишеней, гамма-излучение источника нейтронов дополнительно фильтруется 10 см свинца.

Пик полного поглощения 4,439 МэВ от ²³⁸Ри-Ве источника нейтронов сопровождается пиками однократного и двукратного



Рис. 1. Спектры гамма-излучения для мишени из никеля и титана (*A*), для мишени из железа и открытого ²³⁸Ри-Ве источника (*Б*)

вылета. Из-за невысокой разрешающей способности кристалла NaI(Tl) (по Cs-137 ~7%) линии 0,477 МэВ захвата ядром ¹⁰В и 0,511 МэВ образования пар неразрешимы [8]. Основные линии никеля и титана также сопровождаются пиками однократного и двукратного вылета.

Радионуклид	<i>Е</i> , кэВ	Радионуклид	E , кэ \mathbf{B}
Am-241	59,6	K-40	1461
Co-57	122	Захват на ядре водорода	2223
Ra-226	352	Th-228	2614
Na-22	511	Двойной вылет от линии 12С*	3417
Cs-137	662	Одинарный вылет от линии 12С*	3928
Co-60	1173	Переход в основное состояние 12С*	4439
Na-22	1275	Захват на титане	6760
Co-60	1333	Захват на железе	7636
Eu-152	1408	Захват на никеле	8999

Таблица 1. Соответствие между энергией излучения и энергетическими каналами спектрометрического блока

До 3 МэВ калибровка проводилась с использованием набора образцовых спектрометрических радионуклидных гамма-источников Am-241, Co-57, Cs-137, Co-60, Ra-226, Th-232 и др. (табл. 1)

На рис. 2 приведена полученная характеристика канал-энергия для спектрометрического блока.

Таким образом видно, что использование захватного гаммаизлучения позволяет расширить диапазон калибровки NaI(Tl)спектрометров до 10 МэВ.

Заключение

Теоретически исследована и экспериментально подтверждена возможность использования поля захватного гамма-излучения, сформированного геометрией тепловых нейтронов установки поверочной нейтронного излучения УПН-АТ140 с ²³⁸Pu-Be-источником быстрых нейтронов и мишенями из титана и никеля. С помощью спектрометрического блока детектирования гамма-излучения с NaI(Tl)-детектором 63×160мм получены спектры от мишеней из титана и никеля. Для энергетической калибровки спектрометра можно использовать гамма-излучение 4,439 МэВ, сопутствующее



Рис. 2. Характеристика преобразования канал-энергия для используемого спектрометрического блока

реакции ⁹Ве(α,n)¹²С* в ²³⁸Ри-Ве источнике нейтронов, линию 7,636 МэВ захватного излучения на железе, 6,761 МэВ на титане и 8,999 МэВ на никеле.

Используя различные типы фильтрации можно сформировать три опорных поля для задач дозиметрии:

- 1. В диапазоне энергий до 5 МэВ не применять специальных мишеней, а использовать гамма-излучение от источника нейтронов, отфильтровав другие энергии.
- 2. В диапазоне энергий до 7 МэВ использовать мишень из титана.
- 3. В диапазоне энергий до 10 МэВ использовать мишень из никеля.

Литература

- Choi, H.D., Firestone, R.B., Lindstorm, R.B. Database of promt gamma-rays from slow neutron capture for elemental analysis.
 Vienna: International atomic Energy Agency, 2006.
- 2. J. Kopecky Atlas of Neutron Capture Cross Sections. Vienna,

Austria: 1997. - 370 c.

- 3. Troubetzcoy E., Goldstein H. A Complication of Information on Gamma-Ray Spectra Resulting from Thermal-Neutron Capture. Oak Ridge National Laboratory , 1960.
- 4. Kroupa M., Granja C., Janout Z. Wide energy range gamma-ray calibration source // Journal of Instrumentation. 2011. №6.
- Joel G. Rogers, Mark S. Andreaco, Christian Moisan A 7-9 MeV isotopic gamma-ray source for detector testing // Nuclear Instruments and Metods in Physics Research. - 1998.
- Bermann F. Capture Gamma Ray Beam for the Calibration of Radioprotection Dosemeters between 5 and 9 MeV // Radiation Protection Dosymetry. - 1990. - №30. - C. 237-243.
- 7. Motz H.T. Neutron Capture Gamma-Ray Spectroscopy. Los Alamos Scientific Laboratory Los Alamos, 1970.
- Crister P. Ceberg, Leif G. Salford Neutron capture imaging of ¹⁰B in tissue specimens // Radiotherapy and Oncology. - 1993. - №26.

ДЕТЕКТОР ТЕПЛОВЫХ НЕЙТРОНОВ НА ОСНОВЕ ОПТИМИЗИРОВАННОЙ ПО СОСТАВУ СМЕСИ ZnS(AG)/⁶LiF

В.А. Тарасов¹, Л.А. Андрющенко², И.М. Дубцов¹, О.Л. Шпилинская³, Л.Н. Трефилова², В.Ю. Яковлев⁴

¹Інститут сцинтилляционных материалов НАН Украины, Харьков, Украина; ²Национальный университет гражданской защиты Украины, Харьков, Украина; ³Национальный аэрокосмический университет им. Н. Е. Жуковского «Харковский авиационный институт», Харьков, Украина Томский политехнический университет, ул. Ленина, 30, ⁴Томск. Российская Федерация

Аннотация

Представлены результаты исследований сцинтилляционных характеристик детекторов на основе оптимизированной по составу смеси мелкокристаллических порошков $ZnS(Ag)^{6}LiF$ в эпоксидной матрице. Показано, что детектор, выполненный из 4-х пластин оргстекла размерами $40 \times 25 \times 3$ мм и 5-и слоев $ZnS(Ag)^{6}LiF$, обеспечивает эффективность регистрации тепловых нейтронов 75%.

1. Введение

Лучшими сцинтилляционными материалами считаются оптически однородные среды, конверсионная эффективность которых обеспечивает регистрацию данного вида излучения. Для ряда задач регистрации излучений, существует проблема создания детектирующих систем на основе сцинтилляторов большой площади. Изготовление детекторов такого типа из монокристаллов является очень сложной задачей и требует значительных материальных затрат. Эту проблему можно решить, используя матричную конструкцию сцинтиллятора, однако при этом не удается избежать трудоемкой операции подбора матричных элементов, которые должны быть однородными по своим сцинтилляционным параметрам. Сцинтилляторы большой площади можно получать прессованием или нанесением тонких слоев сцинтилляторов на световоды. Определенным компромиссом между этими двумя подходами является использование композитных сцинтилляционных материалов, которые образованы несколькими фазами вещества, одна из которых должна быть эффективным сцинтиллятором, а остальные – выполнять дополнительные функции.

Для регистрации тепловых нейтронов широко используют дисперсные сцинтилляционные детекторы на основе порошков сцинтиллятора ZnS(Ag) и конвертора ⁶LiF или ¹⁰B₂O₂ [1-4]. Их смесь диспергируют в оптически прозрачную матрицу. Чаще всего в качестве матрицы используют полиэтилен, полиметилметакрилат, полистирол, поливинилтолуол и композиции на основе эпоксидных смол. Публикации о сцинтилляционном материале в виде полимерной пленки, содержащей смесь мелко кристаллических порошков ZnS(Ag) и ⁶LiF, появились еще в 60-е годы прошлого столетия [5]. В настоящее время интерес к подобным композитным материалам усилился в связи с необходимостью замены дорогих и недолговечных Не-З счетчиков в портальных радиационных мониторах. Сцинтилляторы на основе ZnS(Ag)/⁶LiF по избирательности регистрации тепловых нейтронов не уступают газоразрядным счетчикам и могут с успехом использоваться для регистрации слабых потоков тепловых нейтронов в счетном режиме. При этом они выгодно отличаются от газоразрядных счетчиков по скорости отклика и по стоимости [6,7]. Применения композитного материала ZnS(Ag)/⁶LiF для детектирования потоков тепловых нейтронов описаны в [8-10]. При поглощении нейтрона ядром ⁶Li происходит ядерная реакция:

$${}^{6}\text{Li}+n \to t(2,72 \text{ M}) + a(2,06 \text{ M})$$
(1)

Эта ядерная реакция характеризуется большим сечением захвата нейтрона, высоким энергетическим выходом, а ее продуктами являются только короткопробежные частицы.

По сравнению с 10 В, сечение захвата тепловых нейтронов 6 Li примерно в 4 раза ниже, но энергия, выделяющаяся в ядерной реакции (1) с участием 6 Li в 1,73 раза больше, чем в ядерной реакции (2) с участием 10 В:

$${}^{10}\text{B}+n \rightarrow {}^{7}\text{Li}(0,83 \text{ M}) + \alpha(1,47 \text{ M}) + E_{\alpha}(0,48 \text{ M})$$
(2)

Преимуществом реакции (1) с участием ⁶Li является отсутствие γ фона. Степень обогащения LiF изотопом ⁶Li может превышать 90%, и в этом случае эффективность регистрации тепловых нейтронов, поглощенных даже тонким слоем ZnS(Ag)/⁶LiF (толщиной порядка долей миллиметра), является достаточно высокой. Сцинтилляционные параметры этого материала можно улучшить за счет снижения реабсорбции вторичного излучения, используя наноразмерные порошки [11,12]. Однако, предпринимаемые попытки пока не дали ожидаемых результатов.

В рамках данной работы, используя методы экспериментального и компьютерного моделирования, нам удалось оптимизировать по составу и размерам смесь частиц конвертора ⁶LiF и сцинтиллятора ZnS(Ag) в полимерной матрице. На основе полученного сцинтилляционного материала [13] был изготовлен детектор тепловых нейтронов, который по своим свойствам не уступает He-3 счетчикам.

2. Методические аспекты изготовления детектора ZnS(Ag)/6LiF и его характеризация

Для изготовления сцинтилляционных элементов использовали порошки ZnS(Ag) с размерами частиц 6 мкм, 7 мкм, 8 мкм,



Рис. 1. Схема измерительного тракта для исследования спектров амплитуд импульсов: 1 – источник излучения, 2 – образец, 3 – ФЭУ, 4 – блок питания ФЭУ, 5 – зарядочувствительный предусилитель, 6 – спектрометрический усилитель, 7 – анализатор импульсов

9 мкм, 10 мкм и ⁶LiF с размерами частиц 0,5 мкм, 0,6 мкм, 0,7 мкм, 0,8 мкм, 0,9 мкм. Композиционные сцинтилляторы получали путем диспергирования смеси кристаллических порошков различных размеров в оптический эпоксидный клей XTR-311, His Glassworks, Inc (USA). Указанный клей представляет собой двухкомпонентную композицию, отверждаемую при комнатной температуре при соотношении компонентов A:B=10:3. Для изготовления сцинтилляционных элементов использовали состав, содержащий: 56.0 г ZnS(Ag) + 14.0 г ⁶LiF + 23,0 г компонента A + 6.9 г компонента B. Полученный состав наносили на пластины из оргстекла размерами $40 \times 25 \times 3$ мм³, и с помощью ракельного устройства формировали слой сцинтиллятора толщиной 200 мкм.

Влияние размера частиц сцинтиллятора и конвертора на характеристики композитного материала оценивали по амплитудным спектрам, измеренным на установке, схема которой приведена на Рис. 1.

Световая вспышка, возникшая в сцинтилляторе при воздействии излучения источника, попадает на фотокатод фотоэлектронного умножителя (ФЭУ). Импульсы с анода ФЭУ поступают на предварительный усилитель, а затем на усилитель, где они усиливаются по амплитуде и подаются на вход амплитудного



Рис. 2. Схема измерения эффективности регистрации тепловых нейтронов (измерение «кадмиевой разности»): 1 – измерение с Сd-экраном; 2 – измерение без Cd-экрана

анализатора импульсов. В измерительном тракте использовались: предварительный усилитель БУС 2-94, спектрометрический усилитель БУС 2-95, многоканальный анализатор импульсов АМА 03-Ф. В качестве фотоприемника использовался фотоэлектронный умножитель - ФЭУ R1307 Hamamatsu. Для оценки светового выхода использовался источник α-частиц с энергией 5,5 МэВ (²⁴¹Am). Для оценки чувствительности детектора к гамма-излучению использовался источник гамма-квантов с энергией 0,662 МэВ (¹³⁷Cs).

При измерении эффективности регистрации тепловых нейтронов использовался аттестованный источник нейтронов 239 Pu-Be, который излучал поток нейтронов ($1 \cdot 10^5$ н/сек) в шаровом замедлителе из полиэтилена с аттестованным коэффициентом термализации (10%). Тепловые нейтроны поглощались с помощью экрана (толщиной 1 мм) из металлического кадмия с природным изотопным составом.

Измерения проводились по следующей методике. Скорость счета измерялась с кадмиевым экраном и без него (Рис. 2). Разность полученных скоростей счета («кадмиевая разность») представляет собой скорость счета тепловых нейтронов. Отношение этой вели-



Рис. 3. Схематическое изображение многослойного упакованного сцинтиллятора ZnS(Ag)/ 6 LiF: 1 — сцинтилляционный слой ZnS(Ag)/ 6 LiF в эпоксидной матрице; 2 — световод из оргстекла; - 3 — отражающее покрытие из Tetratex.

чины к расчетному значению потока тепловых нейтронов через входное окно детектора представляет собой эффективность регистрации тепловых нейтронов.

В Таблице 1 приведены значения светового выхода, определенного по положению пика альфа-частиц источника ²⁴¹Am в шкале каналов анализатора импульсов, и эффективности регистрации тепловых нейтронов для одного слоя композиционного сцинтиллятора ZnS(Ag)/⁶LiF толщиной 200 мкм, нанесенного на световод из оргстекла размерами $40 \times 25 \times 3$ мм³.

На основании полученных значений светового выхода и эффективности регистрации тепловых нейтронов был выбран оптимальный состав композиционного сцинтиллятора для детектора тепловых нейтронов.

Для увеличения эффективности регистрации нейтронов была выбрана конструкция детектора на основе многослойного композиционного материала с оптимизированным составом смеси мелкокристаллических порошков $ZnS(Ag)/^6LiF$ в эпоксидной матрице, которая показана на Рис. 3.

Сцинтиллятор состоит из 4-х пластин оргстекла размерами $40 \times 25 \times 3$ мм, выполняющих функцию световода и замедлителя нейтронов, и 5-и слоев ZnS(Ag)/⁶LiF. В качестве отражателя исполь-



Рис. 4. Спектры амплитуд импульсов для многослойного детектора тепловых нейтронов при облучении нейтронами Ри-Ве-источника: 1 – без Сd-экрана, 3 – с Cd-экраном, 2 – «Cd-разность».

Таблица 1. Сцинтилляционны	е параметры	композиционного	материала
ZnS(Ag)/ ⁶ LiF.			

№ образца	Размер мі	частиц, км	Световой выход, номер канала	Эффективность регистрации тепловых	
· · · · · · · · · · · · · · · · · · ·	ZnS(Ag)	6LiF	5,5 MəB (241Am)	нейтронов (239Ри-Ве), %	
1	6.0	0.8	450	20.1	
2	8.0	0.5	490	20.3	
3	7.0	0.6	610	28.8	
4	8.0	0.7	630	29.5	
5	9.0	0.7	605	29.0	
6	7.0	0.8	625	28.9	
7	9.0	0.8	610	28.3	
8	10.0	0.6	460	22.4	
9	7.0	0.9	440	23.3	
10	4.5	2.0	430	20.0	

зовалась полимерная пленка Tetratex. Амплитудные спектры импульсов, полученные с помощью детектора на основе многослойного композиционного материала $ZnS(Ag)/^6LiF$ приведены на Рис. 4.

3. Обсуждение результатов

Анализ данных, приведенных, в Таблице 1 показал, что наибольшая эффективность регистрации тепловых нейтронов 28.3–29.6% достигается в однослойном сцинтилляторе, содержащем смесь кристаллических порошков ZnS(Ag) и ⁶LiF с размером частиц в 7-9 и 0,6-0,8 мкм, соответственно. Экспериментальные данные хорошо коррелируют с данными компьютерного моделирования, приведенными в [12]. Размер частиц конвертора LiF (0.6–0.8 мкм) обеспечивает высокую вероятность поглощения нейтронов и высокий выход вторичного излучения. Очевидно, что при размере частиц конвертора ниже 0,6 мкм уменьшается вероятность поглощения нейтронов в конверторе. Увеличение размера зерна ⁶LiF более 0,8 мкм приводит к снижению выхода и энергии вторичного излучения (α-частиц и тритонов) из-за абсорбции в зернах LiF, и, следовательно, к снижению эффективности регистрации нейтронов.

Размер частиц сцинтиллятора ZnS(Ag) 7-9 мкм обеспечивает большую долю потерь энергии α -частиц в сцинтилляторе и, как следствие, высокий световой выход. Эксперимент с определением Cd – разности показывает (Рис.4), что для детектора на основе многослойного сцинтиллятора в аппаратурном спектре наблюдается распределение амплитуд импульсов, в основном связанное с регистрацией тепловых нейтронов. Регистрируются тритоны и альфа-частицы, которые образуются по реакции (1). Неполное поглощение энергии этих частиц в сцинтилляторе приводит к появлению в спектре достаточно широкого распределения с выраженным максимумом. Наличие максимума позволяет надежно установить порог регистрации тепловых нейтронов и определить эффективность регистрации. Для найденного оптимального состава композиционного сцинтиллятора и выбранной конструкции многослойного детектора эффективность регистрации составляет 75%. Спектральное распределение импульсов от гамма-квантов наблюдается при больших усилениях в виде экспоненциального шумового распределения и не дает вклада в область счета тепловых нейтронов при установленном пороге регистрации. Такой результат обусловлен большим «альфа-гамма - отношением» для сцинтиллятора ZnS(Ag) и незначительной эффективной толщиной (200 мкм) этого сцинтиллятора в предлагаемой конструкции.

Таким образом, детектор на основе многослойного сцинтиллятора с оптимизированной по размеру смеси частиц ⁶LiF и ZnS(Ag) в эпоксидной матрице обеспечивает:

- высокую избирательность и эффективность регистрации тепловых нейтронов на уровне 75%;
- возможность замены дефицитных нейтронных детекторов на основе He-3, отслуживших свой срок и в связи с дефицитом гелия;
- технологичность, экономичность, простоту при эксплуатации.

Список литературы

- 1. Kojima T., Katagiri M., Tsutsui N., Imai K., Matsubayashi M., Sakasai K. Neutron scintillators with high detection efficiency //Nuclear ad Methods in Research A529. 2004. P. 325-328
- 2. Brent Allen Clothier, Venkat Subramaniam Venkataramani, Sergio Paulo Loureiro, Adrian Ivan. Patent US 780 0073 G01 30/20. Inorganic scintillating component (zinc sulfide), neutron capture component, and thermoplastic, thermosetting, moldable resin; taple casting, slip casting; radiation detectors. 21.09. 2010.
- 3. Игнатов С.м., Потапов В.Н., Неретин С.М., Петров В.и., Орлов А.Д., Шмурак С.З., Классен Н.В. Детекторы нейтронного излучения на основе твердотельных кремниевых фотоумножителей //ПТЭ. 2009. № 4. С. 60-65.
- Переседов В.Ф. Сцинтилляционный стриповый детектор для регистрации тепловых нейтронов. Приборы и техника эксперимента. 2006. №5. С. 39-47. 5. *Tojo T., Nakajima T.* Preparation of Thermal Neutron Scintllators Based on a Mixture of ZnS:Ag/ ⁶LiF//Nucl. Instrum. and methods. 1967. V. 531. P. 163 – 166.

- Дрейзин В.Э., Овсянников Ю.А., Поляков В.Г. Катыхин А.И., Полищук И.В. Пат. RU 2390800. G 01T 3/00. Способ и устройство для измерения спектральной и интегральной плотности потока нейтронов. Опубл. 27.05. 2010.
- 7. Джаппуев Д.Д., Вальдес-Галисия Х.Ф. //Ядерная физика. 2007, т. 70, №6. С. 1123.
- Громушкин Д.М., Алексеенко В.В.Петрухин А.А. и др. Регистрация потока тепловых нейтронов вблизи поверхности Земли //Известия РАН, сер. физ. 2009, т. 73, №3. с. 425 427.
- 9. Стенькин Ю.В., Алексеенко В.В., Вольченко В.И. и др. Как выглядит ШАЛ в тепловых нейтронах //Известия РАН, сер. физ. 2009, т. 73, №5, с. 647 - 649.
- Алексеенко В.В., Джаппуев Д.Д., Козяривский В.А. и др. Анализ вариаций потока тепловых нейтронов на высоте 1700м над уровнем моря. //Известия РАН. сер. физ. 2007, т.71, №7, с. 1075-1078.
- 11. Peter R. Menge. Patent WO 2011159702 A2, G01 T1/203. Sintillator including a scintillator particulate and a polymer matrix. 22.12.2011.
- 12. ParTec Ltd., 320 W 8th St., Suite 101, Bloomington, IN 47404 Final Report; Improved Neutron Scitillators Based on Nanomaterials.
- Л.А. Андрющенко, В.А. Тарасов, Л.М. Трефілова І.Д. Власова. І.М. Дубцов, В.М. Лісіцин, В.І. Олешко, В.Ю. Яковлев. Сцинтиляційний детектор реєстрації теплових нейтронів. Патент України на винахід № а 2013 07673 від 25.12. 2015, Бюл. №28

КОМПОЗИЦИОННЫЙ ДЕТЕКТОР ⁶LII(EU) ДЛЯ РЕГИСТРАЦИИ ТЕПЛОВЫХ НЕЙТРОНОВ

А. Бояринцев, А. Бобовников, А. Гектин, С. Ковальчук, Т. Непокупная, Ю. Онуфриев, В. Тарасов

Институт сцинтилляционных материалов НАН Украины, 61001, Украина, Харьков, пр. Науки, 60

Аннотация

В работе изучены сцинтилляционные свойства детекторов на основе гранул 6 LiI(Eu) в зависимости от гранулометрического состава, толщины композиционного слоя, эффективной толщины и количества слоев сцинтиллятора. Получена эффективность регистрации тепловых нейтронов для композиционных детекторов на уровне 50-70% от значения эффективности для монокристаллического образца такой же толщины, но с меньшей эффективной толщине 6 LiI(Eu). Подобран размер гранул, для которых регистрация гамма-излучения с энергией до 2МэВ происходит в области, лежащей ниже порога регистрации тепловых нейтронов.

1. Введение

Несмотря на разнообразие существующих способов и устройств для детектирования нейтронов, обычная трубка ³He [1] преобладает в большинстве применений, где требуется отсчет нейтронов с наибольшей эффективностью при наименьшей стоимости. Однако ожидаемый дефицит ³He требует альтернативных решений. Йодид лития, активированный европием, является сцинтиллятором, пригодным для подсчета нейтронов [2]. Кристалл содержит компонент ⁶Li, обогащенный до 96%, с сечением поглощения тепловых нейтронов 941барн. Нейтроны детектируются путем взаимодействия с компонентой ⁶Li кристалла по реакции $n + {}^{6}\text{Li} \rightarrow {}^{4}\text{He} + {}^{3}\text{H} + 4,78$ МэВ. Однако в настоящее время отсутствуют технологии по выращиванию крупногабаритных сцинтилляторов ⁶LiI(Eu). Поэтому основное применение сцинтиллятора ⁶LiI(Eu) – это малогабаритные, переносные, маломощные устройства.

Альтернативой монокристаллу ⁶LiI(Eu) являются композиционные сцинтилляторы, содержащие элементы, захватывающие нейтроны. Технологии производства композиционных сцинтилляторов позволяет создавать детекторы большой площади с высокой геометрической эффективностью регистрации излучения. Для регистрации тепловых нейтронов часто используются композиционные сцинтилляторы на основе ZnS:Ag с изотопами ⁶Li [3] или ¹⁰B [4]. В таких сцинтилляторах образование вторичных заряженных частиц происходит в фазе конвертора, а возникновение сцинтилляций – в фазе ZnS:Ag, в которой частицы теряют разные части своей первоначальной энергии. Композиционный сцинтиллятор на основе гранул ⁶LiI(Eu) представляется более перспективным, т.к. в этом случае все происходит в пределах одной гранулы сцинтиллятора с одинаковой полной потерей энергии частиц.

Помимо возможности создания детекторов большой площади, преимуществами композиционного сцинтиллятора на основе ⁶LiI(Eu) являются возможность использования монокристаллов с механическими дефектами, получение детекторов сложной формы с более низкой стоимостью.

2. Эксперимент

⁶LiI(Eu) является гигроскопичным материалом и требует обязательной инкапсуляции. Поэтому для защиты композиционного сцинтиллятора от влажности атмосферного воздуха был использован алюминиевый корпус с защитным стеклом, диффузным отражателем и крышкой. Упаковка детекторов проводилась в сухом боксе с относительной влажностью воздуха 0% и температурой +21°C.

Для изготовления композиционных сцинтилляторов монокристалл ⁶LiI(Eu) был раздроблен на гранулы механическим способом. Гранулы размером 40-2000 мкм были отсортированы по размерам путем просеивания через калибровочные сита [5]. Необходимое количество гранул требуемой фракции смешивали с оптически прозрачным химически инертным полисилоксановым гелем [6,7] и полимеризовали при температуре +21 °C. Содержание гранул в композиционном слое составило 75 масс. %.

Для исследований было изготовлено два детектора ⁶LiI(Eu) диаметром $D=51\,$ мм на основе гранул с размерами 40-60 мкм, 100-500 мкм и два детектора ⁶LiI(Eu) диаметром $D=12\,$ мм на основе гранул с размерами 1000-2000 мкм. Толщина сцинтилляционного слоя $h\,$ варьировалась в интервале 0,5–4 мм в зависимости от размера используемых гранул.

Амплитудные сцинтилляционные спектры детекторов ⁶LiI(Eu) были получены на анализаторе импульсов AMA-03F. Для измерений использовались нейтронный источник ²³⁹Pu-Be и гамма-источники 137 Cs, 22 Na, 60 Co. Источник нейтронов размещался в полиэтиленовом шаре диаметром 150 мм с толщиной замедляющего слоя ~70 мм с коэффициентом термализации нейтронов 0,1.

Эффективность регистрации тепловых нейтронов D_{tn} рассчитывалась по формуле:

$$D_{tn} = \frac{N_{imp}}{N} \cdot \mathbf{100\%} , \qquad (1)$$

где N_{imp} – количество импульсов, зарегистрированных ФЭУ, N – количество тепловых нейтронов, попавших на входное окно детектора.

Количество тепловых нейтронов, попавших на входное окно детектора *N*, рассчитывалось по формуле:



Рис. 1. Композиционные детекторы $^6\mathrm{LiI}(\mathrm{Eu})$ с размером гранул 40-63 мкм (слева) и 100-500 мкм (справа)

$$N = N_{tn} \cdot \omega, \tag{2}$$

где $N_{tn}-$ количество тепловых нейтронов, испускаемых источником, $\omega-$ телесный угол.

Полученные результаты сравнивались с данными для стандартного детектора на основе монокристаллы ⁶LiI(Eu) диаметром D = 12 мм и высотой h = 2 мм.

3. Результаты и обсуждение

На рисунке 1 представлена фотография детекторов $^{6}\rm{LiI}(Eu)$ с размером гранул 40-63 мкм и 100-500 мкм.

На рисунках 2-5 представлены амплитудные сцинтилляционные спектры, полученные для композиционных детекторов 6 LiI(Eu) с разным гранулярным составом при облучении источником 239 Pu-Be.

Как видно из графиков, форма спектров зависит от размера гранул композиционного слоя. Для детектора из гранул 1000-2000 мкм виден четкий пик по линии 4,78 МэВ. С уменьшением размера гранул до 100-500 мкм пик становится более размытым. Для детектора на основе гранул 40-60 мкм пик отсутствует.



Рис.2. Амплитудный спектр, полученный при регистрации тепловых нейтронов композиционным детектором ⁶LiI(Eu) диаметром D = 12 мм и высотой h = 2 мм (размер гранул 1000-2000 мкм)



Рис.3. Амплитудный спектр, полученный при регистрации тепловых нейтронов композиционным детектором ⁶LiI(Eu) диаметром D = 12 мм и высотой h = 4 мм (размер гранул 1000-2000 мкм)

Для детектора с размерами гранул 1000-2000мкм получено разрешение 38,8% по линии 4,78 МэВ.



Рис.4. Амплитудный спектр, полученный при регистрации тепловых нейтронов композиционным детектором ⁶LiI(Eu) диаметром D = 51 мм и высотой h = 2 мм (размер гранул 100-500 мкм)



Рис.5. Амплитудный спектр, полученный при регистрации тепловых нейтронов композиционным детектором ⁶LiI(Eu) диаметром D = 51 мм и высотой h = 0.5 мм (размер гранул 40-60 мкм)

Также была проверена работа детектора с размерами гранул 100-500 мкм при облучении тепловыми нейтронами в условиях сопутствующего гамма излучения. Для этого детектор подвергался одновременному облучению с использованием источников ²³⁹Pu-Be,



Рис.6. Амплитудный спектр детектора с композиционным сцинтиллятором ⁶LiI(Eu) при облучении тепловыми нейтронами и гамма излучением.

 $^{137}\mathrm{Cs}$ и $\mathrm{Co}_{60}.$ Соответствующие амплитудные спектры представлены на рисунке 6.

Как следует из рисунка 6, для композиционного детектора с размером гранул более 100-500 мкм регистрация гамма-излучения с энергией до 2,0 МэВ происходит в области, лежащей ниже порога регистрации тепловых нейтронов.

Для композиционных детекторов была рассчитана эффективность регистрации тепловых нейтронов. Сравнение полученных результатов производилось относительно детектора на основе монокристалла ⁶LiI(Eu). Результаты приведены в таблице 1

Эффективность регистрации тепловых нейтронов более 50% была получена для детекторов с толщиной композиционного сцинтиллятора 2 мм и 4 мм, и с размером гранул 100-500 мкм и 1000-2000 мкм, соответственно. Из полученных результатов видно, что эффективность регистрации в 50-70% достигается более тонким слоем ⁶LiI(Eu). Также стоит отметить, что с увеличением слоев сцинтиллятора увеличивается количество границ раздела, что приводит к «размыванию» пика, как это видно на спектрах рис. 2-5.

Таблица 1. Эффективность регистрации тепловых нейтронов детекторами с различным гранулометри-

HECKHM COCTABOM					
Сцинтиллятор	Размер гранул	Толщина компози- ционного сцинтил- лятора	Эффективная толщина ⁶ Lil(Eu)	Кол-во слоев ⁶ Lil(Eu)	Эффективность регистрации
⁶ LiI(Eu)	Моно- кристалл	2mm	2mm	1	91%
⁶ LiI(Eu) composite	40-60mkm	0.5mm	0,2MM	~ 10	31%
⁶ L,iI(Eu) composite	100-500мкм	2mm	0,85мм	~6-8	20%
⁶ LiI(Eu) composite	1000-2000mem	2MM	0,85мм	~1-2	54%
⁶ LiI(Eu) composite	1000-2000mkm	4mm	1,7mm	~3-4	62%

4. Выводы

В работе изучены сцинтилляционные свойства детекторов на основе гранул ⁶LiI(Eu) в зависимости от гранулометрического состава, толщины композиционного слоя, эффективной толщины и количества слоев сцинтиллятора.

Результаты работы показали, что детекторы на основе гранул ⁶LiI(Eu) могут применяться для обнаружения тепловых нейтронов.

Найдено, что эффективность регистрации тепловых нейтронов для композиционных детекторов составляет 50-70% от значения эффективности для монокристаллического образца такой же толщины, но при меньшей эффективной толщине ⁶LiI(Eu).

Установлено, что для детектора с размером гранул 100-500 мкм регистрация гамма-излучения с энергией до 2МэВ происходит в области, лежащей ниже порога регистрации тепловых нейтронов.

Литература

- 1. J. Siebach, Characterization of He-3 Detectors Typically Used in International Safeguards Monitoring, 2010
- A. Syntfeld, M. Moszyński et al., ⁶LiI(Eu) in Neutron and γ-ray Spectrometry – a High Sensitive Thermal Neutron Detector
- V.S. Litvin, A.D. Belyaev et al., Bull. Rus. Acad. Sci.: Phys., 73, 2 (2009).
- 4. J. E. McMillan , A. J. Cole et al., Thermal neutron scintillators using unenriched boron nitride and zinc sulfide, Journal of Physics, Conference Series 620 (2015)
- 5. Ukraine patent 111455 (2016)
- N. L. Karavaeva, O.A. Tarasenko, Functional Material. 2009. - Vol. 16., No 1 - P.92-96
- 7. A.Yu. Boyarintsev, N.Z. Galunov, N. L. Karavaeva, Functional Material. 2013. Vol. 20., No 4 P.471-476

СВЕТОСОБИРАНИЕ В КОМПОЗИЦИОННОМ ДЕТЕКТОРЕ ДЛЯ ФИЗИКИ ВЫСОКИХ ЭНЕРГИЙ

Ю. Онуфриев, А. Бояринцев, А. Бобовников, А. Гектин,Б. Гринев, С. Ковальчук, Т. Непокупная

Институт сцинтилляционных материалов НАН Украины, 61001, Украина, Харьков, пр. Науки, 60

Аннотация

В работе исследовано светособирание композиционных детекторов различной конфигурации в зависимости от материалов светопроводящего слоя и спектросмещающего (WLS) волокна. Подобрана оптимальная фракция гранул для производства композиционных детекторов. Определен оптимальный тип WLS волокна, с которым получен максимальный световыход композиционного детектора, а также достигнуты минимальные потери света при удалении источника от WLS волокна. Проведено сравнение полученных результатов с детектором на основе сцинтилляционной пластмассы. Для композиционного детектора получен световыход в 2 раза выше, чем для сцинтилляционной пластмассы аналогичного размера. Неоднородность световыхода композиционного детектора составила около 8%.

1. Введение

С увеличением мощности ускорителя детектора CMS сцинтилляционная пластмасса теряет свои преимущества в связи с низкой радиационной стойкостью. Поэтому актуальным становится поиск альтернативных материалов для ее замены. Существует множество радиационно-стойких монокристаллов, которые удовлетворяют требованиям экспериментов физики высоких энергий [1]. Но отсутствие промышленных технологий выращивания крупногабаритных монокристаллов делают затруднительным и дорогостоящим процесс перекрытия больших площадей.

Альтернативой объемным монокристаллам являются композиционные сцинтилляторы, состоящие из сцинтилляционных гранул в оптически прозрачной среде. Композиционные сцинтилляторы обладают люминесцентными и кинетическими свойствами монокристаллов, но имеют ряд преимуществ – более низкую стоимость за счет использования монокристаллов с дефектами, доступность компонентов и создание сцинтилляторов различных форм и размеров. Основной недостаток композиционных сцинтилляторов – низкая прозрачность, которая является причиной низкого светового выхода. Решением повышения эффективности вывода света из композиционного слоя является размещение на выходной поверхности сцинтиллятора дополнительного светопроводящего слоя.

В данной работе изучено светособирание в композиционном детекторе. Выполнена оптимизация размера гранул сцинтиллятора, материалов композиционного и светопроводящего слоев, подобрано спектросмещающее (WLS) волокно для работы детектора в условиях высоких радиационных доз.

2. Экспериментальная часть

В качестве сцинтиллятора композиционного детектора был выбран монокристалл YSO:Се, обладающей высокой радиационной стойкостью, коротким временем высвечивания, более высоким световыходом относительно сцинтилляционной пластмассы и т.д. [2]. На основе гранул YSO:Се были изготовлены композиционные детекторы различных дизайнов (таблица 1). Гранулы были получены механическим дроблением. Разделение гранул на фракции 300-500 µm и 45-63 µm проводилось путем просеивания через калибровочные сита. Затем гранулы смешивали с оптическим полисилоксановым эластомером [3] и производили полимеризацию

Номер детектора	Размер гранул YSO:Ce, мкм	Светопрово- дящий слой	Размер детектора	толщина сцинтил- лятора, мм	толщина светопрово- дящего слоя, мм
1		UPS-923A	12x60x4	4	0
2	300-500	полисилоксан	12x60x4	2	2
3	300-500	кварцевое стекло	12x60x4	2	2
4	300-500	лейкосапфир	12x60x4	2	2
5	300-500	кварцевое стекло	20x20x4	2	2
6	45-63	кварцевое стекло	20x20x4	2	2

Таблица. 1. Состав и размеры композиционных детекторов

UPS-923A c WLS волокном Y-11



Рис.1. Композиционный детектор 3 и детектор 1 на основе UPS-923A (эталон)

композиционного слоя. Массовая доля гранул в композиционном сцинтилляторе составила 75масс.%. Готовые детекторы оборачивались в диффузный отражатель.

Для измерения сцинтилляционных характеристик, детекторы облучались β -излучением от источника Sr^{90} - Y^{90} , который располагался непосредственно на детекторе со стороны композиционного слоя. Все измерения проводились с помощью анализатора спектров фирмы Canberra.



Рис. 2. Схема композиционного детектора 3 и 4

Детектор 1 состоял из сцинтилляционной пластмассы UPS-923А и являлся эталонным образцом для детекторов 2-4, имеющих аналогичную конфигурацию (рисунок 1).

Между собой детекторы 2-4 отличались материалом светопроводящего слоя. Слой из полисилоксана изготавливался способом, описанным в работе [4]. Пластины из кварцевого стекла или лейкосапфира полировались и приклеивались на композиционный сцинтиллятор с формированием воздушного зазора для WLS волокна, как показано на рис.2.

Сигнал с композиционных детекторов 1-4 (табл.1) выводился через WLS волокно на фотоприемник. В работе использовали WLS волокно Y-11 фирмы Kuraray [5] или WLS волокно из сцинтиллятора YAG:Ce. В качестве фотоприемника применялся ФЭУ R1306 фирмы Hamamatsu.

Для сравнения относительного светового выхода источник визлучения помещался по центру детектирующей части. Для определения неоднородности светового выхода источник перемещался перпендикулярно WLS волокну по плоскости детектора. Значения светового выхода фиксировались в каждой точке.

Детекторы 5 и 6 (рисунок 3) были изготовлены для определения оптимальных размеров сцинтилляционных гранул, обеспечивающих максимальный уровень сигнала, попадающего на WLS волок-


Рис. 3. Схема композиционного детектора 5 и 6.



Рис.4. Схема расположения детекторов 5 и 6 относительно фотоприемника: а) стороной 20х20мм, б) стороной 20х2мм.

но. Детекторы получены путем склеивания кварцевого стекла и композиционного сцинтиллятора плоскостями 20х20мм.

Измерение светового выхода проводились в соответствии со схемами расположения детектора на фотоприемнике, показанными на рисунке 4. В качестве фотоприемника применялся ФЭУ R1307 фирмы Hamamatsu. Полученные результаты измерений сравнивались между собой.

3. Результаты и обсуждение

При облучении детекторов 1-4 в-источником были получены результаты, представленные в таблице 2.

Из результатов тестирования видно, что детектор 2 со светопроводящим слоем из полисилоксана и детектор 3 со светопроводящим слоем из кварцевого стекла имеют световыход выше, чем детектор 1 на основе сцинтилляционной пластмассы. Причем, использование WLS волокна YAG:Се увеличивает сигнал более чем в 2 раза. Детектор 4 со светопроводящим слоем из сапфира имеет световыход 50-80% относительно детектора 1. Это связано с низкой прозрачностью самого сапфира. Таким образом, для замены детектора из сцинтилляционной пластмассы можно применять детекторы со светопроводящим слоем из полисилоксана или кварцевого стекла.

Измерение неоднородности световыхода по мере удаления источника от WLS волокна представлены на графике (рис.5)

Видно, что лучшую неоднородность светового выхода (около 8%) имеет детектор 3 со светопроводящим слоем из кварцевого стекла и WLS волокном из сцинтиллятора YAG:Ce. Детектор 4 со светопроводящим слоем из пластин лейкосапфира имеет неоднородность на уровне детектора 1 на основе сцинтилляционной пластмассы. Поэтому можно сделать вывод, для замены детекторов из сцинтилля-



Рис. 5. Однородность светового выхода композиционных детекторов с разными материалами WLS волокна и светопроводящего слоя

Номер детектора	Относительный световой выход			
	WLS волокно Y-11	WLS волокно YAG:Ce		
1	100%	-		
2	220%	-		
3	120%	250%		
4	50%	80%		

Таблица 2	2. Относител	тьный светоі	зой выход	композицио	онных де	етекторов
2-4 с разл	ичными мат	сериалами си	ветопрово;	цящего слоя		

Таблица 3. Относительный световой выход композиционных детекторов 5, 6 в зависимости от размера сцинтилляционных гранул

Номер детектора	Размер гранул	Световой выход			
		Положение детектора плоскостью на ФЭУ	Положение детектора боком на ФЭУ		
5	300-500 μm	100%	38,5%		
6	45-63 μm	100%	3,4%		

ционной пластмассы подойдет детектор на основе композиционного сцинтиллятора YSO:Се со светопроводящим слоем из кварцевого стекла и WLS волокном из сцинтиллятора YAG:Се.

Использование в композиционном детекторе гранул монокристалла YSO:Се 300-500мкм позволило получить световыход выше, чем для сцинтилляционной пластмассы. Однако, при механическом дроблении остается достаточно большое количество мелкой фракции со средним размером 45-63 мкм. В таблице 3 представлены результаты тестирования детекторов 5,6, показывающие, сколько света дойдет до WLS волокна в зависимости от размера гранул сцинтиллятора. Схема тестирования показана на рисунке 4.

Тестирование показало большое различие светового выхода детекторов в зависимости от их положения на ФЭУ и размера гранул. Так, при расположении детекторов 5 и 6 плоскостью на ФЭУ – световыход одинаковый. Но при боковом положении детекторов на ФЭУ, детектор 6 на основе фракции 45-63 мкм имеет уровень сигнала менее 4%. При увеличении размера гранул до 300-500 мкм уровень сигнала увеличивается в 10 раз. Таким образом, для производства композиционных детекторов с WLS волокном оптимальным является использование гранул размером не менее 300-500 мкм.

4. Выводы

В работе изучено светособирание композиционных детекторов различной конфигурации в зависимости от материалов светопроводящего слоя и спектросмещающего волокна. Определена оптимальная фракция гранул для производства композиционных детекторов. Показано, что кварцевое стекло является оптимальным материалом для светопроводящего слоя.

Использование сцинтиллятора YAG:Се в качестве WLS волокна увеличивает сигнал от композиционного детектора более чем в 2 раза по сравнению со сцинтилляционной пластмассой. Неоднородность композиционного детектора YSO:Се с WLS волокном YAG: Се составляет около 8%, что лучше, чем для сцинтилляционной пластмассы аналогичного размера с WLS волокном Y-11.

Литература

- 1. Ren-Yuan Zhu, The Next Generation of Crystal Detectors, Journal of Physics: Conference Series587(2015)
- E. Auffray, A. Borisevitch, A. Gektin et al., Radiation damage effects in Y2SiO5:Ce scintillation crystals undery-quanta and 24 GeV protons, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 783 (2015) 117–120
- 3. A.Yu. Boyarintsev, N.Z. Galunov, N. L. Karavaeva, Functional Material. 2013. Vol. 20., No 4 P.471-476
- 4. Ukraine patent 111455 (2016)
- 5. http://www.kuraray.com

СПЕКТРАЛЬНО–ЛЮМИНЕСЦЕНТНЫЕ И СЦИНТИЛЛЯЦИОННЫЕ СВОЙСТВА КРИСТАЛЛОВ

 K_2BaX_4 : $Eu^{2+}(X=CI, Br)$

А.С. Пушак¹, Н.В. Реброва², А.Ю. Гриппа², Т.Е. Горбачева², В.В. Вистовский³, С.В. Мягкота⁴, В.Л. Чергинец², В.А. Тарасов²

> ¹Украинская академия печати, ул. Подголоско 19, 79020 Львов, Украина

²Институт сцинтилляционных материалов Национальной академии наук Украины, Пр. Науки, 60, 61001, Харьков, Украина ³Львовский национальный университет им. Ивана Франко, ул. Кирилла и Мефодия 8, 79005, Львов, Украина ⁴Львовский национальный аграрный университет, ул. Владимира Великого 1, 80381. Лубляны, Украина

Аннотация

Настоящая работа посвящена двум сцинтилляционным материалам: $K_2BaCl_4:Eu^{2+}u K_2BaBr_4:Eu^{2+}$. Изучены люминесцентнокинетические свойства под действием фотонов и рентгеновского излучения кристаллов $K_2Ba_{1-y}Eu_yX_4$ (X=Cl, Br; y=0,005, 0,03 и 0,05) выращенных методом Бриджмена-Стокбаргера. Сцинтилляционные свойства кристаллов $K_2BaX_4:Eu^{2+}$ (X=Cl, Br) исследованы с использованием источника гамма-излучения ¹³⁷Cs. Относительный световыход кристаллов возрастает с увеличением концентрации Eu^{2+} . Гигроскопичность $K_2BaX_4:Eu^{2+}$ оценивалась по сравнению с кристаллом NaI:Tl.

Введение

Щелочные и щелочноземельные металлы могут образовывать следующие тройные соединения: AM_2X_5 , AMX_3 , A_2MX_4 и A_4MX_6 , где A – щелочной металл, M – щелочноземельный металл, и X=Cl,

Вг, I [1, 2]. Некоторые материалы AM_2X_5 и AMX_3 , активированные ионами Eu^{2+} , являются довольно эффективными сцинтилляторами [3-7]. Кристалл $KSr_2Br_5:Eu^{2+}$ имеет превосходные сцинтилляционные характеристики: световыход составляет 75000 фотон/МэВ, а энергетическое разрешение – 3,5% для квантов с энергией 662 кэВ [3]. Весьма перспективным быстрым сцинтиллятором является кристалл $CsBa_2Br_5:Eu^{2+}$ со световыходом 91800 фотон/МэВ [4]. В работе [8] показаны сцинтилляционные свойства кристаллов KBa_2I_5 и K_2BaI_4 , активированных ионами Eu^{2+} . Световыход этих кристаллов составляет 90000 и 63000 фотон/МэВ, соответственно.

В системах KX-BaX₂ (X=Cl, Br) известны только соединения состава K₂BaX₄ [9, 10]. Кристалл K₂BaBr₄ плавится при температуре 632°C [9], а K₂BaCl₄ плавится при 659°C [12]. Последний из них кристаллизуется в кубической структуре типа Th₃P₄ с пространственной группой I-43d и параметром кристаллической решетки a=9,35Å [11]. Исследования, посвященные монокристаллам K₂BaX₄:Eu²⁺, не проводились, хотя люминесцентные свойства порошка K₂BaCl₄:Eu²⁺ описаны [12].

Данная работа посвящена росту кристаллов $K_2BaCl_4:Eu^{2+}$ и $K_2BaBr_4:Eu^{2+}$ и исследованию их люминесцентных и сцинтилляционных свойств.

Эксперимент

Монокристаллы K_2BaX_4 : Eu²⁺ (X=Cl, Br) выращивались методом Бриджмена-Стокбаргера. В качестве исходных материалов использовались соединения KX (х.ч.), BaX₂, и EuX₂ (X=Cl, Br). Были выращены кристаллы следующего состава $K_2Ba_{1-y}Eu_yX_4$ (X=Cl, Br; y=0,005, 0,03, и 0,05). Перед приготовлением исходных смесей стехиометрического состава галогениды калия были предварительно высушены при температуре 200°C, а BaX₂, и EuX₂ были получены из BaCO₃ (о.с.ч.) и Eu₂O₃ (х.ч.), соответственно. Порошок BaCO₃ (или Eu₂O₃) растворяли в соответствующей кислоте (36% HCl (о.с.ч.) или 48% HBr (х.ч.)) с образованием раствора BaX₂ (или EuX₃, X=Cl, Br). Раствор выпаривался до начала кристаллизации. Затем добавляли NH₄X (х.ч.) к влажному BaX₂×6H₂O (или EuX₃×6H₂O), и полученную смесь медленно обезвоживали в динамическом вакууме с постепенным поднятием температуры до полной сублимации NH₄X.

Система	Относительный световыход, %	Энергетическое разрешение при 662 кэВ (%)	
${ m K}_{2}{ m BaBr}_{4}{:}0{,}5\%{ m Eu}^{2+}$	12,1	_	
$K_2BaBr_4:3\%Eu^{2+}$	31,8	14,7	
K_2BaBr_4 :5%Eu ²⁺	34,3	12,3	
$\mathrm{K_{2}BaCl_{4}:}0,5\%\mathrm{Eu^{2+}}$	8,2	-	
$K_2BaCl_4:3\%Eu^{2+}$	15,2	-	
$\mathrm{K_{2}BaCl_{4}:5\%Eu^{2+}}$	20	13,7	
NaI:Tl	100	5,9	

Таблица 1. Сцинтилляционные свойства кристаллов $\mathrm{K}_2\mathrm{BaX}_4{:}\mathrm{Eu}^{2+}$ (X=Cl, Br)

EuX $_2$ (X=Cl, Br) получали из EuX $_3$ путем нагревания в вакууме (9 $\times10^{-3}$ Topp) при 850°С в течение 24 ч.

Стехиометрические смеси исходных веществ запаивались под вакуумом в кварцевые ампулы. Ампулы помещались в печь. Температуру медленно повышали до температуры плавления K_2BaX_4 . Чтобы обеспечить хорошее перемешивание всех исходных компонентов шихту выдерживали при этой температуре в течение 24 ч. Выращивание кристаллов проводилось при температурном градиенте 5°С/см со скоростью 3 мм/час. По окончании роста ампулы с кристаллами охлаждались до комнатной температуры со скоростью 7°С/ч. Из выращенных монокристаллов K_2BaX_4 :Eu²⁺ вырезали цилиндрические образцы Ø 12×2 мм, полировали и запаковывали в герметичный алюминиевый контейнер с оптически прозрачным окном.

Гигроскопичность кристаллов оценивалась по приросту массы образцов под воздействием окружающей атмосферы в течение 250 минут при температуре 23°С и относительной влажности 40±2%. Спектры люминесценции и спектры возбуждения люминесценции измерялись на спектрофлуориметре LUMINA (ThermoScientific, USA) со спектральным разрешением 2,5 нм.



Рис. 1. Гигроскопичность кристаллов $\rm K_2BaX_4:5 mon.\%Eu^{2+}(X=Cl, Br)$ по сравнению с NaI:Tl при одинаковых условиях: температура 23°C и относительная влажность 40±2%.

Затухание люминесценции измерялось методом статистического счета единичных квантов во временном окне 5 мкс. Возбуждение люминесценции проводилось светом от искровой лампы на воздухе. Длительность импульса 1 нс, частота повторений 10–15 кГц.

Измерение спектров люминесценции и кинетики затухания под действием импульсного рентгеновского возбуждения проводилось на установке, смонтированной на базе монохроматора МДР-2, со спектральным разрешением 2 нм. Импульсное рентгеновское излучение генерировалось с помощью трехэлектродной трубки РТИ-0.05 с рабочим напряжением 35–40 кэВ. Длительность импульса составляла от 1,5 до 10 нс. Кинетика затухания измерялась во временном окне 5 мкс. Температурный диапазон 77–293 К обеспечивался с помощью азотного криостата.

Относительный световыход и энергетическое разрешение измерялись импульсным методом, подробно описанным в [13]. Амплитудные спектры были получены при облучении гамма-квантами с энергией 662 кэВ (¹³⁷Cs) и регистрировались с помощью ФЭУ Нататаtsu R1307. Относительный световыход определялся путем сравнения положения пика амплитудных спектров исследуемых кристаллов с пиком кристалла NaI:Tl (43000 фотон/МэВ энергетическое разрешение 5,9%). Все измерения проводили в одинаковых условиях.

Результаты и обсуждения

Монокристаллы K₂BaCl₄:Eu²⁺ (Z_{эфф}=45,01) и K₂BaBr₄:Eu²⁺ (Z_{эфф}=43,04) были выращены диаметром 12 мм и длинной 50 мм. Все кристаллы имели хорошую прозрачность с фиолетовым оттенком, который является результатом люминесценции кристаллов.

Относительное поглощение влаги образцами в зависимости от времени показано на рис. 1. Гигроскопичность кристала NaI:Tl регистрировалась в качестве эталона. Кристаллы K_2BaX_4 :Eu²⁺(X=Cl, Br) обладают более низкой гигроскопичностью, чем кристалл NaI:Tl.

Спектры возбуждения и люминесценции кристаллов K_2BaCl_4 , 0.5 мол.% Eu^{2+} и K_2BaBr_4 , 0.5 мол.% Eu^{2+} при комнатной температуре представлены на рис. 2. Спектры люминесценции кристаллов состоят из полосы 370-520 нм с максимумом при 421 нм для K_2BaCl_4 , 0,5 мол. % Eu^{2+} и 425 нм для K_2BaBr_4 , 0,5 мол. % Eu^{2+} . Эти полосы относят к 4f⁶5d¹-4f⁷ электронным переходам в ионах Eu^{2+} [14, 15]. Полуширина полосы люминесценции составляет 36 нм для хлорида и 29 нм для бромида.

Положение максимума полосы люминесценции ионов Eu²⁺ зависит от кристаллического поля матрицы [16]. В матрицах галогенидов положение максимума полосы люминесценции может находится в интервале 400-600 нм. Например, в матрице BaCl₂ положение максимума люминесценции единичных ионов Eu²⁷ соответствует 398 нм [17]. В матрице NaCl положение максимума люминесценции единичных ионов Eu²⁺ соответствует 428 нм и относится к излучению ионов европия входящих в состав примесновакансионного диполя Eu²⁺-V_c⁻ [18, 19]. Однако возможен случай, когда ионы европия могут создавать разные преципитаты или более сложные комплексные фазы (разные тройные соединения) названые фазами Судзуки [19, 20, 21]. В этом случае в спектре люминесценции наблюдаются полосы соответствующие излучению единичных ионов европия и полосы ионов европия входящих в состав преципитатов. То есть положение максимума полосы люминесценции чувствительно к кристаллическому окружению ионов европия. В нашем случае, для кристаллов К₂BaX₄:Eu²⁺(X=Cl, Br)



Рис. 2. Спектры возбуждения люминесценции и спектры люминесценции для кристаллов $\rm K_2BaCl_4:0,5$ мол.%Eu^2+ (кривые 1, 2) и $\rm K_2BaBr_4:0,5$ мол.%Eu^2+ (кривые 3, 4) при комнатной температуре.

наблюдается одна полоса люминесценции, что указывает на размещение ионов европия в одинаковом кристаллическом окружении, а именно – в узлах кристаллической решетки, замещая ионы Ba²⁺. Изовалентность европия и бария способствует локализации ионов европия в узлах кристаллической решетки.

Спектры возбуждения люминесценции кристаллов $K_2BaCl_4:0,5$ мол.% Eu^{2+} и $K_2BaBr_4:0,5$ мол.% Eu^{2+} очень похожи, что указывает на сходство структур этих кристаллов. На рис. 2 показано спектральное перекрывание спектров возбуждения и люминесценции в интервале 370–420 нм. В этом случае свет, испущенный одним ионом европия, может быть поглощен и переизлучен другим ионом европия. Аналогичное перекрывание наблюдалось и в других системах, активированных европием [4, 5].

Рис. 3 иллюстрирует кинетику затухания люминесценции кристаллов K_2BaX_4 , 5 мол. % Eu^{2+} (X=Cl, Br) при возбуждении длиной света 337 нм. Кривые кинетики затухания K_2BaCl_4 , 5мол. % Eu^{2+} и K_2BaBr_4 , 5 мол. % Eu^{2+} описываются одной экспонентой с постоянной времени 480 нс и 580 нс соответственно. Такие временные константы являются типичными для кинетики затухания люминесценции европия в галогенидах щелочноземельных металлов [22, 23].



Рис. 3. Кривые кинетики затухания фотолюминесценции кристаллов $\rm K_2BaBr_4:5мол.\%Eu^{2+}$ (кривая 1) и $\rm K_2BaCl_4:5мол.\%Eu^{2+}$ (кривая 2) при возбуждении длинной волны 337 нм.

На рис. 4 приведены спектры рентгенолюминесценции кристаллов K₂BaX₄,5 мол. % Eu²⁺ (X=Cl, Br) при температурах 293 K и 77 K. При комнатной температуре положение максимумов полос на спектрах совпадает и лежит при 423 нм (рис. 4а). Полосы соответствуют излучению ионов европия. Полуширины полос люминесценции составляют 33 нм и 40 нм для K₂BaBr₄,5 мол.% Eu²⁺ и K₂BaCl₄, 5 мол.% Eu²⁺, соответственно. Все спектры не симметричны.

При температуре жидкого азота в спектре рентгенолюминесценции кристаллов K_2BaX_4 :Eu²⁺ (X=Cl, Br) наблюдаются широкие полосы с максимумом при 350 нм (рис. 46). Так как эти полосы присутствуют только при низких температурах, то можно предположить, что они соответствуют собственной люминесценции матриц K_2BaX_4 .

² Однако, интенсивность полосы люминесценции кристалла $K_2BaBr_4,5\,$ мол.% Eu^{2+} с максимумом при 350 нм слабее, чем у $K_2BaCl_4,5\,$ мол.% $Eu^{2+}.$ Это может указывать, что при 77 К собственная люминесценция матрицы K_2BaBr_4 претерпевает температурное тушение сильнее, чем в случае матрицы $K_2BaCl_4.$



Рис. 4. Нормированные спектры рентгенолюминесценции кристаллов $K_{2}BaX_{4}$,5 мол.% $Eu^{2+}(X=Cl, Br)$: (а) при комнатной температуре; (b) при 77 К.

Кривые кинетики затухания рентгенолюминесценции при комнатной температуре представлены на рис. 5. Постоянные времени затухания имеют значение 1 мкс для $K_2BaCl_4:Eu^{2+}$ и 1,5 мкс для $K_2BaBr_4:Eu^{2+}$. Такие значения хорошо согласуются с параметрами затухания, характерными для ионов европия [24]. При облучении кристаллов рентгеновскими квантами свечение ионов европия возбуждается электрон-дырочными парами, образовавшимися при поглощении рентгеновских квантов. В этом случае кинетика затухания свечения ионов европия отображает кинетику релаксации электронного возбуждения в матрице.

Принимая во внимание константы затухания рентгенолюминесценции, в качестве времени формирования сигнала при измерении световыхода было выбрано время 6 мкс. Наилучшие амплитудные спектры показаны на рис. 6. В Таблице 1 суммированы сцинтилляционные характеристики для кристаллов K₂BaX₄:Eu²⁺ (X=Cl, Br) при комнатной температуре при возбуждении гамма квантами



Рис. 5. Кривые кинетики затухания рентгенолюминесценции кристаллов K2BaX4, 5 мол.%Eu²⁺(X=Cl, Br) при комнатной температуре.



Рис. 6. Амплитудные спектры рентгенолюминесценции кристалла $\rm K_2BaBr_4, 5\ мол.\%Eu^{2+}$ при комнатной температуре, полученные при возбуждении гамма квантами $\rm (^{137}Cs)$.

(¹³⁷Cs). Максимальное значение световыхода относительно кристалла NaI:Tl наблюдается для образцов с концентрацией европия 5 мол.%, и примерно равно 20% для хлорида и 34.3% для бромида. У кристаллов, находившихся в сухом боксе несколько лет, изменений в сцинтилляционных свойствах не наблюдалось. Кристаллы $K_2BaBr_4:Eu^{2+}$ и $K_2BaCl_4:Eu^{2+}$ можно использовать в качестве сцинтилляторов для рентгеновского и гамма излучения. Более низкая чувствительность к влаге кристалла $K_2BaX_4:Eu^{2+}$ по сравнению с NaI:Tl облегчает обработку кристалла.

Для достижения лучших сцинтилляционных характеристик, дальнейшие исследования будут направлены на улучшение качеств монокристаллов, что включает в себя улучшение очистки сырья, оптимизацию параметров роста и выбор наиболее подходящего метода полировки кристаллов.

Выводы

Монокристаллы K₂BaX₄ (X=Cl, Br), активированные ионами Eu²⁺, были выращены методом Бриджмена-Стокбаргера. Кристаллы обладают сцинтилляционными свойствами. Для обоих кристаллов относительный световыход возрастает с увеличением концентрации европия. Максимум полосы рентгенолюминесценции кристаллов K₂BaX₄:Eu²⁺(X=Cl, Br) лежит при 421 нм для хлорида и 425 нм для бромида. Временные константы затухания рентгенолюминесценции кристаллов K₂BaX₄:Eu²⁺ находятся в микросекундном диапазоне.

Литература

- G. Meyer, N. Gerlitzki, S. Hammerich, Rare-earth diiodides and derivatives, J. Alloys Compd. 380(2004) 71-78.
- 2. O. Muller and R. Roy, The Major Ternary Structural Families, Springer-Verlag, New York, NY, USA, 1974.
- L. Stand, M. Zhuravleva, H. Wei, C.L. Melcher, Crystal growth and scintillation properties of potassium strontium bromide *Opt. Mater.* 46 (2015) 59–63.
- R. Borade, E. Bourret-Courchesne, S. Derenzo, Scintillation properties of CsBa₂Br₅:Eu²⁺, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A 652 (2011) 260–263.
- A.Yu Grippa, N.V. Rebrova, T.E. Gorbacheva, V.Yu. Pedash, N.N. Kosinov, V.L. Cherginets, V.A. Tarasov, O.A. Tarasenko, A.V. Lopin, Crystal growth and scintillation properties of CsCaBr₃:Eu²⁺ (CsCa_{1-x}Eu_xBr₃, 0≤x≤0.08), J. Cryst. Growth 371 (2013) 112–116.

- M. Zhuravleva, B. Blalock, K. Yang, M. Koschan, C.L. Melcher, New single crystal scintillators: CsCaCl₃:Eu and CsCaI₃:Eu, J. Cryst. Growth 352 (2012) 115–119.
- V.L. Cherginets, N.V. Rebrova, A.Yu Grippa, Yu.N. Datsko, T.V. Ponomarenko, V.Yu. Pedash, N.N. Kosinov, V.A. Tarasov, O.V. Zelenskaya, I.M. Zenya, A.V. Lopin, Scintillation properties of CsSrX₃:Eu²⁺(CsSr_{1-y}Eu_yX₃, X=Cl, Br; 0≤y≤0.05) single crystals grown by the Bridgman method, *Mater. Chem. Phys.* 143 (2014) 1296–1299.
- L. Stand, M. Zhuravleva, B. Chakoumakos, J. Johnson, A. Lindsey, CL. Melcher, Scintillation properties of Eu²⁺-doped KBa₂I₅ and K₂BaI₄, J. Luminescence 169, Part A (2016) 301.
- 9. R. Riccardi, C. Sinistri, G. Y. Campari, A. Magistris, Binary Systems Formed by Alkali Bromides with Barium or Strontium Bromide, Z. *Naturforsch.* 25a (1970) 781-785.
- 10. V. F. Zinchenko, Interrelation of acidity-basicity, solubility and ability to interaction of halides of MXandM'X2 (M Li ч Cs, M' Be ч Ba, X Cl ч I), Herald ONU Chemistry 20 (2015) 6-14.(in Russian).
- H. J. Seifert, J. Warczewski, K. Burhenn, *Rev. Chim. Miner*.20 (1983) 504-515.
- D. H. Gahane, B. M. Bahirwar, and S. V. Moharil, Optical Properties of Some A₂BCl₄ Type Chlorides Int. J. Math. Comput. Phys. Electr. Comput. Eng. 7 (2013) 1072-1075.
- E. Sysoeva, V. Tarasov, O. Zelenskaya, Comparison of the methods for determination of scintillation light yield, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res.* A 486 (2002) 67–73.
- 14. P.A. Rodnyi, Physical Processes in Inorganic Scintillators, CRC Press, New York, 1997.
- B. Dorenbos, Energy of the first 4f⁷→ 4f⁶5d¹ transition of Eu²⁺ in inorganic compounds, J. Luminescence. 104 (2003) 239-260.
- 16. P. Dorenbos Energy of the Eu²⁺ 5d state relative to the conduction band in compounds *J. Luminescence* 128 (2008) 578–582
- 17. L.H. Brixner, A. Ferretti Eu²⁺ Fluorescence in BaC12 J. of Solid State Chem. 18 (1976)111-116.

- Yu.A. Ossypuan, R.B.Morgunov, A,A, Baskakov, S.Z. Shmurak, and Y.Tanimoto. New luminescent band by plastic deformation of NaCl:Eu phosphors. *Phys. Stat. Sol.* (a) 201 (2004) 148-156.
- 19. F.J. Lopez, H. Murrieta S., J. Hernandez A., and J. Rubio O. Optical absorption and luminescence investigations of the precipitated phases of Eu^{2+} in NaCl and KCl single crystals. *Phys Rev* B, 22 (1980) 6428-6439.
- J.E. Munoz-Santiuste, J. Garcia-Sole. Precipitation-induced quenching of Eu²⁺ luminescence in NaCl:EuCl₂. *Phys. Rev.* B 38 (1988) 10874-10877.
- N. Shiran, A. Gektin, Y. Boyarintseva, S. Vasyukov, A. Boyarintsev, V. Pedash, S. Tkachenko, O. Zelenskaya, D. Zosim Modification of NaI crystal scintillation properties by Eu-doping, *Opti. Mater.* 32 (2010) 1345–1348.
- J. Selling, M. D. Birowosuto and P. Dorenbos, S. Schweizer, Europium-doped barium halide scintillators for x-ray and γ-ray detections, J. Appl. Phys. 101 (2007) 034901.
- A.S. Pushak, V.V. Vistovskyy, S.V. Myagkota, T.M. Demkiv, O.T. Antonyak, J.R. Dacyuk, P.V. Savchyn, A.S. Voloshinovskii, Luminescence properties of SrCl₂–Eu microcrystals embedded in NaCl host, *Funct. Mater.* 17 (2010). 294–299.
- 24. S. Shionoya, W.H. Yen, Phosphor Handbook, CRC Press LLC, 1998.

ИСКАЖЕНИЯ СПЕКТРОВ ФОТОЛЮМИНЕСЦЕНЦИИ ПОБОЧНЫМ ИЗЛУЧЕНИЕМ И СПОСОБЫ ЕГО УСТРАНЕНИЯ

В.А. Штительман¹, И.Н. Дубцов¹, Л.Н. Трефилова², В.Ю. Яковлев³

¹Институт сцинтилляционных материалов НАН Украины, пр. Науки 60, Харьков 61001, Украина, ²Национальный университет гражданской защиты Украины, ул. Чернышевская 94, Харьков 61023, Украина ³Томский политехнический университет, ул. Ленина 30, Томск 634034, Российская Федерация

Аннотация

Изучены искажения, вносимые побочным светом в регистрируемый сигнал люминесцентного отклика материала на его УФ-возбуждение. Исследования проводились на измерительной установке, в которой излучение ксеноновой лампы XBO-150 диспергируется монохроматором МДР-2 и фокусируется на нелюминесцирующем образце, после чего анализируется монохроматором СФ-4. Установлено, что спектральный профиль побочного света, возникающего из-за того, что небольшая доля света остается недиспергированной, состоит из двух широких перекрывающихся полос с максимумами 410 нм и 340 нм, относящихся к побочному свету в решеточном и призменном монохроматоре МДР-2 и СФ-4, соответственно. Установка диафрагм подавляет побочный свет в монохроматоре СФ-4. Максимальные искажения, вносимые побочным светом решеточного монохроматора в регистрируемый сигнал, проявляются в синей области спектра при монохроматическом возбуждении в области 240 нм.

1. Введение

Для регистрации спектров возбуждения и люминесценции обычно используется стандартная техника: источник излучения возбуждающего света, монохроматор, выделяющий узкую полосу из спектра излучения этого источника, и второй монохроматор, выделяющий узкую полосу из спектра люминесценции исследуемого образца. Однако, наряду с узкополосным излучением из монохроматоров выходит также небольшая доля недиспергированного излучения, называемого также побочным светом или мешающим (паразитным) излучением [1]. Причиной его возникновения является несовершенство оптических компонентов измерительной установки. По своей сути побочное излучение представляет собой рассеянный свет, который проявляется в спектрах в виде широких полос и узких ложных спектральных линий, называемых "духами", и регистрируется фотоприемником, как аддитивная составляющая к полезному сигналу. Если по своей величине полезный сигнал сопоставим с сигналом от побочного света, то последний неизбежно будет вносить искажения в измеряемый спектр. Для исключения этого аппаратурного эффекта из зарегистрированного сигнала необходимо вычесть аддитивную составляющую побочного света, спектральный профиль которой зависит от длины волны возбуждающего света.

Цель данной работы исследовать спектральные профили побочного света в зависимости от длины волны возбуждающего монохроматического света и найти способы снижения вклада побочного света в регистрируемый сигнал.

2. Эксперимент

Исследования проводились на специально созданной установке на основе схемы скрещенных монохроматоров (Рис. 1). Монохроматический свет получали с помощью светосильного решеточного монохроматора МДР-2, на щель которого фокусировалось излучение ксеноновой лампы XBO-150. Образец располагался под углом 45 градусов к потоку возбуждающего светового пучка и в фокусе



Рис. 1. Блок-схема установки для измерения спектров

параболического зеркала, проецирующего изображение образца на щель призменного монохроматора спектрофотометра СФ-4, с помощью которого анализировался спектр люминесценции. В качестве фотоприемника использовался фотоэлектронный умножитель ФЭУ-100. Регистрация спектров побочного излучения проводилась в условиях, когда держатель образца был пуст и когда образцом, помещенным в держателе, служило алюминиевое зеркало или прозрачный образец CsI, изготовленный из неактивированного кристалла, выращенного методом Стокбаргера в вакууме из соли CsI высокой степени чистоты. Образец CsI имел форму диска размерами $\emptyset 14 \times 3$ мм³, обе поверхности которого были отполированы до зеркального блеска.

Как видно на Рис. 2, в спектре радиолюминесценции этого образца наблюдалась только полоса собственного свечения с максимумом 310 нм, имеющего экситонную природу. Как известно [2], при комнатной температуре собственное свечение не возбуждается в области спада фундаментального поглощения CsI из-за тушащих дефектов в поверхностном слое, где возбуждающее УФ-излучение полностью поглощается. С учетом этой особенности и того факта,



Рис. 2. Спектр люминесценции кристалла CsI, возбуждаемый излучением источника $^{241}\mathrm{Am.}$ T=295К



Рис. 3. Спектральные профили побочного излучения для монохроматического полосы излучения с максимумом 240 нм: до (1-3) и после (4) установки поглощающих фильтров; (1) – пустой держатель, (2) – зеркальный отражатель, (3,4) – образец CsI

что в спектре радиолюминесценции отсутствуют какие-либо полосы дефектных или примесных центров, образец CsI представляет собой прозрачный материал, который при комнатной температуре не люминесцирует под действием УФ-света. Это, в свою очередь, означает, что сигнал, регистрируемый при возбуждении, как алю-



Рис. 4. Схема расположения поглощающих диафрагм (1, 2 и 3) в монохроматор
е $\mathrm{C}\Phi\text{-}4$

миниевого зеркала, так и образца CsI вызван не люминесценцией, а рассеянным в установке возбуждающим светом, который мы будем называть побочным светом.

3. Результаты и обсуждение

Монохроматическое излучение с длиной волны 240 нм, выделяемое решеточным монохроматором МДР-2, создает в измерительной установке побочный свет, который можно зарегистрировать даже при отсутствии образца в держателе. Спектральный профиль этого рассеянного света простирается от длинноволнового спада узкой полосы возбуждающего излучения с максимумом 240 нм до 700 нм и при отсутствии образца в держателе имеет вид двух слабых широких перекрывающихся полос с максимумами в области 340 нм и 410 нм (Рис. 3, кр. 1). Когда в держателе находится зеркальный отражатель или кристалл CsI, интенсивность побочного излучения заметно возрастает в указанной спектральной области, и на фоне широкой длинноволновой полосы проявляется ряд узких пиков в области 410, 430 и 480 нм, последний из которых представляет собой второй порядок монохроматического излучения с максимумом 240 нм.

Для подавления побочного света в монохроматоре СФ-4 были установлены три дополнительные диафрагмы (Рис. 4). Как видно на Рис. 3 это дало положительный результат, поскольку в спектре побочного света, измеренном с образцом CsI, исчезла полоса с мак-



Рис. 5. Спектральные профили побочного света для монохроматических полос возбуждения с максимумами 240 нм (1), 300 нм (2) и 340 нм (3).

симумом 340 нм (Рис. 3, кр. 4), а при отсутствии образца в держателе уровень сигнала во всем спектральном диапазоне не выходил за пределы шумов $\Phi \Theta V$.

С увеличением длины волны возбуждения от 240 нм до 300 -340 нм уровень побочного света уменьшается примерно в 70 раз (Рис. 3). Измерительная установка обладает наименьшей чувствительностью к люминесцентному отклику при возбуждении образца в области 240 нм. С увеличением длины волны возбуждения уровень побочного света уменьшается и, следовательно, повышается чувствительность установки при регистрации отклика слабо люминесцирующих материалов на УФ-возбуждение. Для кристаллов с высоким выходом люминесценции, искажение сигнала побочным светом следует учитывать только при возбуждении в области 240 нм.

Литература

- S. Brown, W.S. Tarrant. Optica Acta, 1978, 25, No. 12, 1175-1186
- H. Nishimura, M. Sakata, T. Tsujimoto, M. Nakayama, Phys. Rev. B. 51 (1995) 2167-2172.

ПРИРОДА ЛЮМИНЕСЦЕНЦИИ НАВЕДЕННЫХ ОБЛУЧЕНИЕМ ЦЕНТРОВ ОКРАСКИ В CsI:TI И ИХ РОЛЬ В СЦИНТИЛЛЯЦИОННОМ ПРОЦЕССЕ В.Д. Алексеев¹, А.Л. Шпилинская¹, В.Ю. Яковлев², А.Н. Карнаухова², Л.Н. Трефилова³, Е.В. Тарахно³

¹Институт сцинтилляционных материалов НАН Украины, 60 пр. Науки, Харьков 61001, Украина

²Национальный университет гражданской защиты Украины, 94 ул. Чернышевская, Харьков 61023, Украина ³Томский политехнический университет, 30 ул. Ленина. Томск 634034. Российская Федерация

Аннотация

В температурном интервале 80-295К исследованы спектрально-кинетические свойства активаторных центров окраски $Tl^0v_a^{+}$ и $Tl^{2+}v_c$, наведенных облучением в CsI(Tl). Доказано, что дырочные $Tl^{2+}v_c^{-}$ центры выполняют функцию акцепторов в сцинтилляционном процессе, к которым резонансным путем передается энергия от возбужденных Tl^+ центров без снижения конверсионной эффективности, но с изменением спектрального состава и формы сцинтилляционного импульса кристалла CsI:Tl. Доказано, что деградация светового выхода поврежденного радиацией кристалла CsI:Tl обусловлена только реабсорбцией, причиной которой является поглощение Tl⁺-сцинтилляций электронными $Tl^0v_a^{+}$ центрами окраски, которые при температурах свыше 200К превращаются в центры тушения.

1. Введение

Под действием облучения в кристаллах CsI:Tl образуются активаторные центры окраски Tl⁰v_a⁺ и Tl²⁺v_c⁻, представляющие собой активатор-вакансионные диполи, в которых электронный Tl⁰ и дырочный Tl²⁺ центры окраски, располагается в соседнем узле с анионной v_a^+ и катионной вакансией v_c^- , соответственно [1]. Кулоновское поле вакансии, входящей в состав центра, повышает его термическую устойчивость, что обеспечивает возможность участия Tl⁰v_a⁺ и Tl²⁺v_c⁻ центров наряду с основными Tl⁺-центрами в процессе формирования сцинтилляционного импульса. Наведенные высокодозным облучением активаторные центры окраски, безусловно, негативно влияют на сцинтилляционные характеристики CsI: Tl, поскольку их полосы поглощения перекрываются со спектром свечения Tl⁺ центров (Рис. 1). В литературе обсуждается две причины деградации светового выхода облученных кристаллов CsI:Tl – реабсорбция [2-5] и снижение конверсионной эффективности [6-7]. В числе результатов, доказывающих, что причиной деградации является именно реабсорбция, следует отметить линейное увеличение потерь светового выхода с увеличением толщины изодозно облученных образцов CsI:Tl, при том, что световой выход образцов толщиной менее 5-10 мм остается неизменным [2].

Однако известны и такие результаты исследования влияния облучения на сцинтилляционные свойства CsI:Tl, которые невозможно объяснить только реабсорбцией. Так, например, потери светового выхода изодозно облученных образцов CsI:Tl уменьшаются с увеличением содержания активатора (см. Рис. 2 в [6]), а высокодозное облучение приводит к изменению спектрального состава [8] и формы сцинтилляционного импульса CsI:Tl [9]. Поэтому деградацию светового выхода авторы [6-7] связывают не столько с ухудшением прозрачности, сколько со снижением сцинтилляционной эффективности из-за образования радиационных дефектов, представляющих собой вакансионные кластеры, которые являются центрами тушения и эффективно конкурируют с Tl⁺-центрами в захвате электронных возбуждений. Но такая модель центров тушения противоречит тому, что под действием дневного света кристаллах в CsI:Tl с примесью бората или карбоната эффективно образуются такие же активаторные центры окраски, как и при у-облучении [10], хотя энергии световых фотонов недостаточно для создания вакансий. Согласно [9], ионизирующее излучение генерирует в CsI:Tl дефекты решетки, представляющие собой мелкие центры захвата V_k-центров. Процесс термо-активированного освобождения $V_{\rm k}$ центров с этих ловушек задерживает $V_{\rm k}$ рекомбинацию с Tl^0 центрами, что приводит к увеличению длительности затухания Tl⁺-сцинтилляций. Однако, до сих пор не получены какие-либо экспериментальные подтверждения того, что при облучении в CsI: Tl образуются вакансионные кластеры, так же как и радиационные дефекты, представляющие собой мелкие дырочные центры, и поэтому невозможно однозначно ответить на вопрос, вызывает ли облучение снижение конверсионной эффективности CsI:Tl.

В данной работе используется совершенно другой подход в интерпретации сцинтилляционного процесса в облученных кристаллах CsI:Tl, в основу которого положены два экспериментально доказанных факта: 1) при возбуждении основных Tl⁺ центров осуществляется безызлучательный перенос энергии к Tl²⁺v_c⁻ центрам окраски [10] и 2) с увеличением концентрации активатора соотношение числа Tl⁰v_a⁺ к Tl²⁺v_c⁻ центров, образующихся при изодозном облучении, возрастает в пользу Tl²⁺v_c центров [11]. В работе представлены результаты исследования спектрально-кинетических свойств люминесценции Tl⁰v_a⁺ и Tl²⁺v_c центров окраски, наведенных облучением, которые доказывают, что деградация светового выхода облученных кристаллов CsI:Tl обусловлена только реасорбцией.

2. Эксперимент

Исследования проводились на образцах, изготовленных из кристаллов CsI:Tl с примесью карбонат-ионов, которые были

выращены методом направленной кристаллизации в инертной атмосфере. Выбор карбоната в качестве соактиватора обусловлен тем, что CO₃²⁻-ионы стимулируют образование Tl⁰v_a⁺ и Tl²⁺v_c центров окраски в CsI:Tl не только под действием ионизирующего излучения, так и при освещении дневным светом [10]. Концентрация СО₃²⁻-ионов в исследуемых образцах, определяемая оптически по коэффициенту поглощения в максимуме деформационной полосы 878 см⁻¹ [11] составляет 4,7·10⁻⁴ моль%. Концентрация Tl в этих образцах, определяемая химическим методом [12] составляет 8,1.10⁻² моль%. Образцы окрашивались при комнатной температуре ү-излучением источника ⁶⁰Со, нефильтрованным светом ртутной лампы, а также электролитически при напряжении постоянного электрического поля 300В, которое прикладывалось к образцу при температуре 575К. Спектры поглощения измерялись на спектрофотометре СФ-26. Люминесценция возбуждалась излучением дейтериевой лампы ДДС-400 через монохроматор МДР-2 и анализировалась монохроматором УМ-2 и регистрировалась с помощью фотоэлектронного умножителя ФЭУ-100. В измеренные спектры возбуждения и люминесценции внесены необходимые поправки на спектральное распределение лампы ДДС-400 и чувствительность фотоприемника ФЭУ 100. Измерения проводились в температурном интервале 80-295К.

3. Экспериментальные результаты и обсуждение

3.1. Люминесценция $Tl^0 v_a^{+}$ - центров.

На Рис. 1 приведены спектры поглощения радиационно-окрашенного кристалла CsI:Tl. Полосы поглощения $Tl^0v_a^+ u Tl^{2+}v_c^-$ центров окраски отмечены стрелками на этом рисунке. Указанные полосы смещаются при понижении температуры, и их максимумы при 295К до 80К приведены в Таблице 1. Дырочные $Tl^{2+}v_c^-$ центры окраски имеют меньшую термическую стабильность по сравнению с электронными $Tl^0v_a^+$ -центрами. После 7-часового отжига при 373К

Таблица 1. Максимумы полос $Tl^0v_a^{\ +}$ и $Tl^{2+}v_c^{\ -}$ центров окраски в спектрах поглощения, измеренных при 295К и при 80К (в скобках).

Положение максимума			Центр окраски		
3,18 (3,14)		2,67 (2,58)		$\mathrm{Tl}^{2+}\mathrm{v_c}^-$	
2,88 (2,82)	2, (2,	38 33)	2,21 (2,32)	$\mathrm{Tl}^0 \mathrm{v_a}^+$	



Рис. 1. Спектры поглощения радиационно-окрашенного кристалла CsI:Tl, измеренные до (1) и после (2) 7-ми часового отжига при 373К.

 ${
m Tl}^{2+} {
m v}_{\rm c}^{-}$ центры в радиационно-окрашенном кристалле полностью разрушаются и в спектре только полосы электронных активаторных центров окраски ${
m Tl}^{0} {
m v}_{\rm a}^{+}$ (Рис.1, кр. 2), рекомбинационными партнерами которых являются решеточные ${
m I}_{3}^{-}$ центры окраски, а также молекулярные анионы ${
m CO}_{3}^{-}$ и ${
m HCO}_{3}^{-}$, образующиеся в результате радиационно-химических реакций, протекающих при окрашивании [10].

В области полосы поглощения с максимумом 2,32 эВ в отожженном образце при 80К возбуждается однополосная люминесценция ${\rm Tl^0v_a^{+-}}$ центров, спектр которой аппроксимируется гауссианой с максимумом ${\rm E}_{\rm макс}{=}2,0$ эВ и полушириной FWHM = 0.16 эВ (Рис. 2.*a*).



Рис. 2 Спектр (а) и температурная зависимость (б) фотолюминесценции радиационно-окрашенного кристалла CsI(Tl), измеренные после разрушения ${\rm Tl}^{2+}v_{\rm c}$ центров в результате 7-часового отжига при T=373K. Е_{возб}=2,32 эВ.

С ростом температуры интенсивность люминесценции уменьшается и при 200К она уже практически потушена. Полученная нами температурная зависимость люминесценции в области 2,0 эВ следует закону тушения Мотта, спрямляясь в координатах {Ln(I₀/I-1)-1/T} (Рис. 2.б). Энергия активации тушения люминесценции, Tl⁰v_a⁺- центров, определенная по наклону этой зависимости, составляет 0,053 эВ.

3.2. Люминесценция Tl2+vc--центров при 80К

Изучение люминесцентных свойств $Tl^{2+}v_c^{-}$ -центров окраски проводилось на радиационно-окрашенном образце CsI:Tl, в спектре поглощения которого отсутствовали полосы $Tl^0v_a^{+}$ - центров. Это достигалось следующим образом. Сначала кристалл окрашивался электролитически дырочными центрами, затем облучался, после чего и некоторое время хранился в темноте при комнатной температуре. Сочетание процедуры электролитического и радиационно-



Рис. 3. Спектры поглощения кристалла CsI:Tl, измеренные сразу (1) и через трое суток (2) после окрашивания. T= 295К.

химического окрашивания кристалла нарушало соотношение числа электронных $Tl^0v_a^{\ +}$ и дырочных $Tl^{2+}v_c^{\ -}$ активаторных центров в пользу последних, поэтому после полного разрушения $Tl^0v_a^{\ +}$ центров в процессе релаксации некоторое количество $Tl^{2+}v_c^{\ -}$ центров оставалось неразрушенным (Рис. 3). Достичь такого результата более простым способом не представляется возможным по двум причинам. Облучая УФ-светом кристалл CsI(Tl), можно существенно увеличить число $Tl^{2+}v_c^{\ -}$, но невозможно полностью разрушить $Tl^0v_a^{\ +}$ - центры; 2) при электролитическом окрашивании в кристаллах CsI:Tl образуются собственные дырочные центры, поскольку их спектры поглощения не отличаются от спектров неактивированного кристалла CsI. Вероятно, что именно под действием облучения собственные дырочные центры трансформируются в $Tl^{2+}v_c^{\ -}$ центры, в спектре поглощения которых, измеренном при 295К, наблюдается две полосы с максимумами 3,18 эВ и 2,67 эВ (Рис. 3, кр. 2)

При 80К в коротковолновой полосе поглощения $Tl^{2+}v_c^{-}$ центров с максимумом 3,14 эВ возбуждается люминесценция, спектр которой является суперпозицией двух полос с максимумами 2,08 эВ и 1,82 эВ (рис. 4a), которые аппроксимируются гауссианами с полу-



Рис. 4. Спектры люминесценции (1-3), возбуждаемой в полосах с максимумами 3,14
эВ (1'), 2,58 эВ (2') и 2, 34 эВ(3') спектра возбуждения
 $\rm Tl^{2+}v_c^{-}$ - центров при 80К. Пунктирные линии – подгоночные гауссианы.

ширинами FWHM=0,2 эВ и FWHM=0,23 эВ. В полосе поглощения $Tl^{2+}v_c^{-}$ с максимумом 2,58 эВ возбуждается люминесценция, спектр которой состоит из одной полосы с максимумом 2,08 эВ (Рис. 4.6). Возбуждая люминесценцию в области 1,82 эВ, наряду с полосой 3,14 эВ мы обнаружили еще одну полосу с максимумом 2,34 эВ. Спектр люминесценции, возбуждаемый в этой полосе, состоит из полосы с максимумом 1,82 эВ (Рис. 4с). Отсутствие в спектре поглощения $Tl^{2+}v_c^{-}$ центров полосы в области 2,34 эВ и низкая интенсивность полосы люминесценции с максимумом 1,82 эВ, возбуждаемой в области 2,34 эВ, свидетельствуют о том, что прямой и обратный переходы, порождающие эти полосы, являются лишь частично разрешенными.



Рис. 5. Семейство спектров люминесценции, возбуждаемой в области 2,58 эВ в температурном интервале 80-295К.

Приведенные на Рис. 4 результаты показывают, что полоса возбуждения с максимумом 2,58 эВ и полоса люминесценции с максимумом 2,08 эВ являются сопряженными, т.е. соответствуют прямому и обратному переходу между одними и теми же состояниями $Tl^{2+}v_c^{-}$ центра окраски. Полоса возбуждения с максимумом 2,34 эВ и полоса люминесценции с максимумом 1,82 эВ также являются сопряженными.

Выше было показано, что при T = 80К в полосе 2,58 эВ возбуждается только коротковолновая полоса люминесценции $Tl^{2+}v_c^{-}$ центров. При повышении температуры от 80 К до 200 К коротковолновая полоса люминесценции уширяется, а ее максимум смещается от 2,08 эВ до 2,11эВ, соответственно, (Рис. 5). С учетом квантового выхода люминесценции η_L температурная зависимость интенсивности люминесценции $I_1(T)$ описывается, согласно [13], выражением:

$$I_{1}(T) = I_{0} \cdot \eta_{L}(T) = \frac{I_{0}}{1 + \frac{p_{0}^{1}}{p_{L}} e^{-\frac{E_{1}}{kT}}}$$
(1),



Рис. 6. Экспериментальные зависимости интенсивности в максимуме коротковолновой (черные кружки) и длинноволновой (белые кружки) полос люминесценции от температуры при E_{возб}=2,58 эВ. Сплошная и пунктирная линии - температурные зависимости выхода коротковолновой полосы люминесценции, рассчитанные по формуле (1) и (2), соответственно.

где I_0 – выход фотолюминесценции при $T \to 0$; p_L - вероятность люминесценции; E_1 и p_0^1 - энергия активации и частотный фактор внутрицентрового процесса тушения люминесценции. Уравнение (1) представляет собой известный закон тушения Мотта для внутрицентрового тушения. В температурном интервале 80-200 К уменьшение интенсивности люминесценции $\text{Tl}^{2+}v_c^{-}$ центров, возбуждаемой в полосе с максимумом 2,58 эВ, подчиняется закону Мотта (Рис. 7, кривая 1), и рассчитанная по формуле (1) энергия активации термического тушения этой люминесценции составляет $E_1 = 0,04$ эВ.

При повышении температуры от 200 до 295К выход люминесценции падает сильнее, чем этого можно было бы ожидать в случае тушения по Мотту (Рис. 6). Отрицательное отклонение от закона Мотта указывает на существование дополнительного канала тушения, связанного с термоактивированным процессом уменьшения заселенности уровня, ответственного за коротковолновую полосу



Рис. 7. Спектры люминесценции (белые кружки), измеренные при разных температурах ($E_{\rm возб}=2,58$ эВ). Пунктирные линии –подгоночные гауссианы, сплошные линии –сумма гауссиан.



Рис. 8. Температурные зависимости полуширины FWHM (а) и положения максимума (б) двух полос в спектре люминесценции, возбуждаемой в области $E_{\text{возб}} = 2,58$ эВ.

люминесценции $Tl^{2+}v_c^{-}$ центра. Исходя из этого, температурную зависимость интенсивности коротковолновой люминесценции во всем температурном интервале 80-295К следует аппроксимировать выражением:

$$I_{2}(T) = \frac{I_{0}}{1 + \frac{1}{p_{L}}(P_{1} + P_{E})} = \frac{I_{0}}{1 + \frac{1}{p_{L}}(p_{0}^{1}e^{-\frac{E_{1}}{kT}} + p_{0}^{E}e^{-\frac{E_{E}}{kT}})}$$
(2)

где $I_2(T)$ – температурная зависимость интенсивности люминесценции с учетом дополнительного канала тушения, P_E и E_E – вероятность и энергия активации процесса дополнительного тушения, соответственно, p_0^E – предэкспоненциальный множитель, обратно пропорциональный времени протекания процесса.

Таблица 2. Параметры температурной зависимости выхода коротковолновой люминесценции $Tl^{2+}v_c^{-}$ -центров.

I ₀	$\frac{p_1^0}{p_L}$	Е ₁ (эВ)	$\frac{p_0^E}{p_L}$	Е ₂ (эВ)
11,32	17,6	0,041	696280	0,27

Как видно на Рис. 6, температурная зависимость интенсивности коротковолновой полосы люминесценции, рассчитанная по формуле (2), показывает хорошее совпадение с экспериментом. Подгоночные параметры расчетной кривой представлены в Таблице 2

При температурах выше 200К, которые активируют дополнительный канал тушения, спектр люминесценции, возбуждаемой в полосе 2,58 эВ, представляет собой сумму двух полос свечения $Tl^{2+}v_c^{-}$ центра, каждая из которых аппроксимируется гауссианой. С ростом температуры вклад длинноволновой полосы в суммарный спектр увеличивается (Рис. 7), ее полуширина возрастает, а максимум смещается в длинноволновую область (Рис. 8).

Квантовая эффективность тушения коротковолновой полосы

 $\eta_E(T) = 1 - \frac{I_2(T)}{I_1(T)}$, проявляющегося в температурном интервале

200-295К, линейно зависит от интенсивности длинноволновой полосы люминесценции $Tl^{2+}v_c^{-}$ центра (Рис.9).

Таким образом, приведенные в данном параграфе результаты свидетельствуют о термически активированном процессе переноса энергии с возбужденного уровня, ответственного за коротковолновую полосу, на уровень, ответственный за длинноволновую полосу люминесценции $Tl^{2+}v_c^{-}$ центра. Из данных, приведенных в Таблице 2, следует, что энергия активации этого процесса составляет 0,27 эВ.

Процессы, стоящие за возбуждением и излучательной релаксацией Tl²⁺v_c⁻ центров окраски мы предлагаем интерпретировать в рамках следующей модели. Полосы возбуждения Tl²⁺v_c⁻ обус-



Конфигурационная координата, Q

Рис. 9. Диаграмма уровней образующегося рекомбинационныи путем ${\rm Tl}^+ {\rm v_c}^-$ центра свечения.

ловлены переносом электрона с I⁻ иона на дырочный Tl²⁺ центр, возмущенный катионной вакансией v_c⁻, с образованием галоидной дырки, которая автолокализуется в виде V_k центра. В результате электронной рекомбинации Tl²⁺v_c⁻ центр окраски превращается в возбужденный Tl⁺v_c⁻ центр свечения, который излучательно релаксирует в основное состояние. Быстро-затухающая коротковолновая полоса люминесценции с максимумом 2,08 эВ и временем затухания около 10 нс [14] связана с разрешенным ${}^{1}P_{1} \rightarrow {}^{1}S_{0}$ переходом Tl⁺ иона, в то время как длинноволновая полоса с максимумом 1,82 эВ и временем затухания около 1 мкс [1] обусловлена ${}^{3}P_{1} \rightarrow {}^{1}S_{0}$ переходом, который запрещен по спину, но из-за возмущающего влияния катионной вакансии, становится частично разрешенным. Ограничения для синглет-триплетного перехода проявляются также в низкой интенсивности длинноволновой полосы люминесценции и в отсутствии сопряженной с ней полосы в спектре поглощения.

При возбуждении фотонами с энергией 2.58 эВ заселяется $^{1}\mathrm{P}_{1}$ уровень, после чего Tl⁺ ион переходит в $^{1}\mathrm{S}_{0}$ состояние с излучением коротковолновой полосы с максимумом 2,08 эВ. Поскольку перехо-
ды между уровнями с различной мультиплетностью запрещены, то электрон может перейти с ${}^{1}\mathrm{P}_{1}$ на ${}^{3}\mathrm{P}_{1}$ уровень только с помощью фононов, преодолев барьер высотой 0,27 эВ. Процесс заселения ${}^{3}\mathrm{P}_{1}$ уровня термически активируется при температуре выше 200К, поэтому в спектре люминесценции при этих температурах наблюдается вторая длинноволновая полоса. Восстановление $\mathrm{Tl}^{2+}\mathrm{v_{c}}^{-}$ центра окраски происходит путем захвата галоидной дырки $\mathrm{Tl}^{+}\mathrm{v_{c}}^{-}$ - центром свечения после его излучательной релаксации. Предложенная модель $\mathrm{Tl}^{+}\mathrm{v_{c}}^{-}$ центра свечения подтверждается данными поляризационных исследований люминесценции активаторных центров окраски [15], согласно которым они имеют C_{4} симметрию.

3.3. Влияние наведенных облучением центров окраски на процесс переноса энергии

Диапазон рабочих температур детектора на основе сцинтилляционного кристалла CsI:Tl находится в области 213-333К, где свечение Tl⁰v_a⁺-центров окраски уже потушено. Поглощая сцинтилляции, Tl⁰v₂⁺-центры выполняют функцию центров тушения в указанном диапазоне температур и, следовательно, ответственны за потери светового выхода из-за реасорбции. Чтобы выяснить, как влияют Tl²⁺v_c⁻ центры окраски на световой выход CsI:Tl, были измерены спектры катодолюминесценции кристалла CsI:Tl до и после его радиационного окрашивания Tl²⁺v_c⁻ центрами. Как видно на Рис. 10, максимум спектра катодолюминесценции окрашенного кристалла смещен в длинноволновую область. Изменение спектра облученного кристалл CsI:Tl вызвано резонансным переносом энергии от основных Tl⁺ центров к наведенным облучениям центрам окраски [1] Поскольку, согласно [17] Tl⁺-сцинтилляции возникают в результате туннельного перехода электрона с Tl^0 на V_k центр в близко расположенных донорно-акцепторных парах $\{Tl^0V_k\}$ [17], то превращение $Tl^{2+}v_c^{-}$ -центр окраски в $Tl^+v_c^{-}$ -центр свечения происходит в рекомбинационном процессе благодаря переходу электрона с Tl⁰ на Tl²⁺v_c⁻-центр. Условием резонанса является перекрытие волновых функций этих центров, которое



Рис.10. Спектры импульса катодолюминесценции необлученного (1) и радиационно-окрашенного (2) кристалла CsI:Tl при 295 К.



Рис. 11. Осциллограмма импульса катодолюминесценции облученного кристалла CsI(Tl), регистрируемая в области 2.25 эВ и 1,82 эВ при 295К

с высокой вероятностью реализуется из-за большого численного превосходства донорно-акцепторных пар $\{Tl^0V_k\}$, образующихся в сцинтилляционном процессе.

Сравнение спектров, приведенных на Рис. 10 показало, что по сравнению с необлученным образцом уменьшение доли светосуммы S_0 в коротковолновой области спектра облученного образца полностью компенсируется увеличением доли светосуммы S_{irrad} в длинноволновой области спектра. Это означает, что в сцинтилляционном импульсе облученного и необлученного образца CsI:Tl испускается одинаковое число оптических фотонов, т. е радиационное повреждение не снижает конверсионной эффективности кристалла CsI:Tl.

Согласно [16] время затухания длинноволновой люминесценции составляет около 1 мкс и остается неизменным во всем исследуемом температурном интервале, поэтому можно ожидать, что время затухания импульса люминесценции, регистрируемого в области излучения Tl⁺ центров, будет меньше, чем время затухания сенсибилизированной люминесценции Tl²⁺v, - центров окраски. Экспериментальным подтверждением этого предположения является различие в кинетике затухания импульса катодолюминесценции радиационно-окрашенного образца CsI:Tl, которые регистрируются для оптических фотонов с энергией 2,25 и 1,82 эВ, испускаемых Tl⁺ центров и Tl²⁺v_o⁻ центрами окраски, соответственно (Рис. 11). Наблюдаемое авторами [9] увеличение длительности сцинтилляций сильно-облученных кристаллов CsI(Tl) также связано с резонансным переносом энергии от Tl⁺ к наведенным облучением Tl²⁺v_c⁻ центров окраски, при котором заселяется метастабильный ³Р₁ уровень Tl⁺ иона, возмущенного v_c⁻ катионной вакансией.

Выводы

В результате исследования абсорбционных и люминесцентных свойств активаторных центров окраски, наведенных облучением в CsI(Tl), было установлено, что свечение электронных $Tl^0v_a^+$ центров окраски потушено при температуре выше 200К. Предложена модель, в рамках которой интерпретируются абсорбционные и люминесцентные свойства $Tl^{2+}v_c^-$ центров окраски. Участие $Tl^{2+}v_c^-$ в сцинтилляционном процессе сводится к резонансному переносу энергии от возбужденных Tl^+ центров к $Tl^{2+}v_c^-$ центров окраски. Люминесценция возникающих рекомбинационным путем $Tl^+v_c^-$ центров свечения изменяет спектр и форму сцинтилляционного импульса. Доказано, что радиационное повреждение не снижает конверсионной эффективности, но является причиной реабсорбции Tl^+ -сцинтилляций $Tl^0v_a^+$ центрами, которые становятся центрами тушения в диапазоне рабочих температур сцинтилляционоого детектора на основе CsI(Tl).

Список литературы

- Yakovlev, V., Trefilova, L., Meleshko, A., 2008. Color centers in heavily irradiated CsI (Tl) crystals. J. Lumin. 2008, 128, 9, 1447–1453.
- Shpilinskaya, L.N., Zosim, D.I., Kovaleva, L.V., Kudin, A.M, Mitichkin, A.I., Charkina, T.A., 2000. Radiation damage of CsI(Tl) crystals. Proc. 5th Int. Conf.on Inorganic Scintillators and Their Applications», Moscow State University Press, 538-543.
- 3. R. Zhu. Radiation damage of scintillating crystals. Proc. 5th Int. Conf.on Inorganic Scintillators and Their Applications", Moscow State University Press, 2000, 73-88.
- [2] Beylin, D.M., Korchagin, A.I., Kuzmin, A.S., Kurdadze, L.M., Oreshkin, S.B., Petrov, S.E., Shwartz, B.A., 2005. Study of the radiation hardness of CsI(Tl) scintillation crystals. Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. A 541, 501-515.
- S. Longo and J.M. Roney. Radiation hardness of 30cm long CsI(Tl) crystals. Journal of Instrumentation, Volume 11, August 2016. S. Longo and J.M. Roney 2016 JINST 11 P08017.
- M. E. Globus; B. V. Grinyov; M. A. Ratner Effect of irradiationinduced micropores on fluorescence yield and radiation hardness of alkali-halide scintillation crystals. Proc. SPIE 3446, Hard X-Ray and Gamma-Ray Detector Physics and Applications, 242 (July 1, 1998); doi:10.1117/12.312897
- Ratner M., Grinyov B., Ratner A. Manifestations of charged lattice defects in excitonic luminescence and control over properties of wide-band scintillation crystals. Rad. Measur. 2004, 38, 4-6, 627-632
- И.А. Березин, В.М. Горбачев, В.В. Кузянов, И.Н.Стеньгач, Уваров Н.А. Радиационные эффекты в монокристаллах CsI(Tl) при воздействии у-излучения. Атомная энергия, 35, 5, (1973),

- Hamada, M.M., Costa, F.E., Shimizu, S., Kubota S., 2002. Radiation damage of CsI(Tl) scintillators: blocking of energy transfer process of Vk centers to Tl+ activators. Nucl. Instr. and Meth; A 486, 330-335.
- L. Trefilova, T. Charkina, A. Kudin, N. Kosinov, L. Kovaleva, A. Mitichkin. Radiation defects creation in CsI(Tl) crystals and their luminescence properties. J. Lumin. 2003, 102-103. P.543-550.
- L. Trefilova, B. Grinyov, V. Alekseev, A. Mitichkin, V.Yu. Yakovlev and A. Meleshko, Photo- and radiation-stimulated processes in CsI(Tl) crystals. IEEE Trans. Nucl. Sci., vol. 55, No. 3, June 2008, 1263-1269
- 12. G. A. Babich, A. B. Blank, E. P. Kisil, M. F. Salikhadzanova, Application of voltammetry in the investigation of functional inorganic materials, Func. Mat., vol. 8, No.2, pp.369-376, 2001.
- А.Ф. Зацепин, Д.Ю. Бирюков, В.С. Кортов, С.О.Чолах Безызлучательная релаксация фотовозбужденных О10-центров в стеклообразном SiO2. ФТТ, 44, вып. 9.
- Медников А.К., Штанько В.И. Люминесценция сложных активаторных центров в кристаллах галогенидов цезия // Труды 25 Всесоюзной конф. по люминесценции. Львов. 1978. С. 88.
- П.П. Феофилов. Анизотропия люминесценцирующих центров окраски в кристаллах CsI(Tl) // Оптика и спектроскопия. - 1956.– Т. 1. – С. 952–954.
- А.А. Мелешко, Л.Н.Трефилова, В.Ю. Яковлев, Импульсная фотолюминесценция γ-окрашенных кристаллов CsI(Tl), Известия ВУЗов, Физика, 2009, 52, 12-3, с. 211-214.
- 17. V. Yakovlev, L. Trefilova, A. Meleshko, Time-resolved optical spectroscopy of CsI(Tl) crystals by pulsed electron beam irradiation. J. Lumin. 129 (2009) 790–796

О РОЛИ МЕТРОЛОГИЧЕСКОГО ОБЕСПЕЧЕНИЯ В ПРОЦЕССЕ ПРОИЗВОДСТВА КРИСТАЛЛОВ

В.Р. Любинский, Н.И. Молчанова, Л.Л. Ващенко

Институт сцинтилляционных материалов НАН Украины, пр. Науки 60, Харьков 61001, Украина

Аннотация

В статье рассматривается вопрос о роли метрологического обеспечения в процессе выращивания кристаллов. Рассмотрен перечень работ проводимых метрологической службой.

Сегодня в стране строятся рыночные отношения, на смену производства общественного продукта и его централизованного распределения пришло производство рыночного товара и его реализация через рыночный механизм свободной конкуренции. В этих условиях метрологическая служба (MC) на предприятии работает не просто на предприятие, не просто для выполнения требований нормативных документов общетехнической системы - Государственной системы обеспечения единства измерений. Метрологическая деятельность на предприятии в рыночных условиях сама по себе никому не нужна, МС должна действовать во взаимодействии с другими службами предприятия, чтобы обеспечивать прибыль для создания стабильного развития предприятия и обеспечения его нормального экономического положения. Экономический эффект от деятельности МС на предприятии связан с организацией и использованием различных измерений. Достоверные измерения требуемой точности необходимы для автоматизации технологических процессов и всего предприятия в целом, для различных испы-



Рис. 1.

таний, для обеспечения контроля качества продукции, процессов, работ и т.п.

Взаимосвязь качества продукции и измерений неразрывна, но ведущим является качество, именно для его контроля требуются измерения. Изменения в подходах к обеспечению качества, к управлению качеством в значительной степени влияют на метрологическую деятельность на предприятии. Увидеть, воспринять, принять соответствующие научно-технические и организационные решения для адаптации метрологической деятельности, значит сделать метрологию на предприятии эффективной. К сожалению, приходится констатировать, что реальное внедрение систем качества на отечественных предприятиях не характеризуется массовостью, глубиной проработки и активным внедрением современного менеджмента качества.

Однако во всем мире при производстве продукции разрабатывается и внедряется система управления качеством в соответствии с ISO 9001, в этой связи технологический процесс изготовления сцинтилляционных монокристаллов на нашем предприятии был сертифицирован в соответствии с ISO 9001, а это гарантирует, что высшим руководством принят стратегический подход к системе управления качеством изготовления кристаллов, значит и изменяются воззрения на метрологическое обеспечение (MO) посколь-

ку оно присутствует на всех уровнях управления производством выращивания кристаллов (рис.1). В настоящее время термин МО принято понимать, как в широком, так и в узком смысле. В широком - это теория и методы измерений, контроля, обеспечения точности и единства измерений. Более узкое значение МО направлено на конкретизацию работ, которые проводятся на нашем предприятии с целью стабилизации качества выпускаемых кристаллов, т. е. чтобы каждая і-тая единица выпускаемой продукции была как первая, и уровень качества соответствовал понятию Шесть сигм. Шесть сигма — статистическая концепция, на основе которой процесс измеряется в параметрах брака: при высшем уровне в Шесть сигма число дефектов составляет 3,4 на миллион возможных. Шесть сигма — это также философия управления, в которой основное внимание уделяется устранению брака за счет применения таких приемов, когда ставка делается на анализ результатов измерений и совершенствование процессов, и чтобы выйти на уровень качества продукции практически с нулевым браком.

Этой цели посвящается весь перечень проводимых метрологической службой работ, а именно (рис 2):

- проводим постоянный анализ состояния производства выращивания кристаллов, разрабатываем на его основе мероприятия по совершенствованию качества;
- разрабатываем и проводим мероприятия по внедрению методов и средств поверки СИ;
- проводим метрологическую экспертизу нормативно-технической и технологической документации;
- разрабатываем и проводим организационно-технических мероприятия по внедрению современной измерительной техники и совершенствованию методик измерений;
- проводим работу по обеспечению постоянной исправности средств измерений;
- проводим поверку, калибровку и ремонта СИ; направляем СИ не обеспеченных ремонтом на предприятии в специализированные сторонние организации;
- заключаем договора с организациями на проведение ремонта СИ;



Рис. 2.

- обеспечиваем правильное применении средств измерений и их соответствие оптимальным режимам контроля технологического процесса выращивания кристаллов;
- устанавливаем оптимальную периодичность поверок СИ;
- участвуем в определении потребности подразделений предприятия в СИ и в их распределении;
- согласовываем поступающие от подразделений заявки на приобретение СИ и контроль за их реализацией;
- оформляем заключения по актам на списание СИ;
- составляем перечни поверки и калибровки, и проводим контроль за их исполнением;
- проводим постоянный контроль состояния СИ, находящихся в эксплуатации и на хранении; изучаем эксплуатационные свойства СИ,

- предъявляем руководителям всех подразделений нашего предприятия обязательные предписания об устранении выявленных нарушений метрологических правил, требований и норм и об изъятии из применения непригодных СИ, для проведения испытаний и контроля;
- участвуем в разработке СИ специального назначения и методик их аттестаций и проверки;
- участвуем в проведение метрологической аттестации не стандартизуемых СИ;
- обеспечиваем хранение и сличение в установленном порядке рабочих эталонов, поддерживаем в надлежащем состоянии образцовые СИ;
- проводятся работы по повышению квалификации специалистов, связанных с выполнением и метрологическим обеспечением измерений.

Из изложенного выше становится очевидным, что в решении вопроса МО производством участвуют все ведомственные органы и службы, связанные с «производством и потреблением» измерительной информации, с нормативным и приборным обеспечением производства кристаллов.

Деятельность по MO любых научных, технических и социальных задач строится на базе определенных технико-экономических показателей, характеризующих ее уровень, эффективность и влияние на общие критерии качества решения этих задач (полная система таких показателей в настоящее время еще до конца не разработана и это является важнейшей проблемой на стыке метрологии, экономики и организации производства).

Конечная цель MO – это сведение к минимуму возможности принятия ошибочных решений по результатам измерений, испытаний и контроля сырья, материалов, изделий и процессов.

Таким образом, такое комплексное решение всех поставленных в нашем институте задач по МО позволило обеспечить оптимизацию технологического процесса, стабилизировать процесс выращивания и поддерживать заданное качество выращиваемых кристаллов и оставаться конкурентоспособными.

МЕЖДУНАРОДНЫЕ СТАНДАРТЫ ІЕС ДЛЯ СЦИНТИЛЛЯЦИОННОЙ ТЕХНИКИ

Б.В. Гринев, В.Р. Любинский, Ю.А. Даниленко

Институт сцинтилляционных материалов НАН Украины, пр. Науки 60, Харьков 61001, Украина

В соответствие с соглашением об ассоциации между Украиной и Европейским союзом и приказом Министерства экономического развития и торговли Украины №1493 [1] с 1 января 2016 на территории Украины вместо национальных стандартов постепенно вводятся в действие международные стандарты.

На сегодняшний момент в Украине существуют несколько методов гармонизации международных стандартов для введения в действия в Украине, один из которых — это метод подтверждения, который в целом сводится к переводу обложки европейского или международного стандарта, а сам текст остается на языке оригинала (идентичный стандарт), а другой — процесс разработки-перевода, который может включать дополнительные национальные составляющие — это унифицированные стандарты, но в реальности — это разработка стандартов идентичных по содержанию международному, а отличающиеся лишь по форме представления.

А значит, украинским производителям, чтобы быть конкурентоспособными, придется выпускать продукцию, которая должна обязательно соответствовать международным требованиям и стандартам. На требования к ним можно повлиять **только в процессе разработки самого международного стандарта**.



Рис. 1. Работа стран в ТК/ПК IEC в качестве полноправного члена

Одна из трех глобальных организаций, которая разрабатывают международные стандарты для всего мира – это Международная Электротехническая Комиссия (IEC). Деятельность IEC включает в себя два принципиальных направления: подготовку международных стандартов IEC и управление Системами оценки соответствия IEC. Работа в IEC осуществляется 174 техническими комитетами и подкомитетами, которые включают в себя около 1000 рабочих групп, около 10000 экспертов со всего мира. Большинство экспертов привлечено из промышленности, но в работе IEC принимают участие эксперты от предпринимателей, государственных испытательных и исследовательских лабораторий, научных кругов и групп потребителей.

Передовыми странами придается большое значение работе в IEC. Эксперты передовых стран входят в состав многих технических комитетов и подкомитетов IEC. Активно участвуют в работе по международной стандартизации и азиатские страны. Так, Китай работает во всех технических комитетах (ТК) и подкомитетах (ПК) IEC в качестве полноправного члена. Для сравнения, Украина является полноправным членом только в 30 из 176 структурных подразделений IEC, а в 130 – в качестве наблюдателя (Рисунок 1).

Украина является полноправным членом в работе TC 45 IEC "Ядерное приборостроение". Работа одного из подкомитетов IEC TC 45В «Аппаратура для радиационной безопасности» связана с разработкой стандартов на методы контроля ионизирующих излучений, которые позволяют своевременно выявлять аномалии в окружающем фоне, обнаруживать и идентифицировать источники радиоактивного излучения, предупреждать несанкционированное распространение ядерных материалов и радиоактивных веществ. Использование этих чувствительных и высокоавтоматизированных систем дает возможность осуществлять контроль непрерывного потока людей, багажа, грузов или транспортных средств на таможенных постах, в аэропортах, железнодорожных, морских, речных и автомобильных вокзалах.

Так, например, в TC 45 IEC разработана серия стандартов, которая относится к ранцевых приборам для определения радиоактивных материалов:

- Стандарт IEC 62618:2013 [2] устанавливает требования к методам испытаний для радиологических, экологических, механических и электромагнитных характеристик персональных радиационных детекторов спектроскопического типа (SPRD), предназначенных для обнаружения контрабандной перевозки радиоактивных материалов.
- Стандарт IEC 62694:2014 [3] устанавливает требования к характеристикам, методам испытаний и соответствующим условиям использования радиационных ранцевых детекторов (PRS) для обнаружения незаконного перемещения радиоактивных материалов.
- Стандарт IEC 62401:2007 [4] применяется к персональным дозиметрам ионизирующего излучения (PRD) для обнаружения и оценки незаконных перевозок радиоактивных материалов, в том числе фотонов и / или нейтронов, в естественных условиях окружающей среды.

Другая серия стандартов устанавливает требования к портативным или ручным устройствам для обнаружения и идентификации радионуклидов:

- Стандарт IEC 62327:2006 [5] определяет требования к ручным приборам для обнаружения и идентификации радионуклидов и индикации интенсивности дозового эквивалента фотонной радиации в окружающей среде, в частности, детекторам, электронным многоканальным анализаторам, их программному обеспечению, библиотекам радионуклидов, общим методам испытаний.
- Стандарт IEC 62533:2010 [6] распространяется на высокочувствительные портативные приборы, которые используются для обнаружения радиоактивных материалов и предназначены для обнаружения небольших изменений естественного фона, обусловленного незаконным или непреднамеренным перемещением радиоактивных материалов.
- Стандарт IEC 62534:2010 [7] распространяется на высокочувствительные ручные приборы для обнаружения нейтронов радиоактивных материалов. Эти приборы предназначены для обнаружения небольших изменений фона окружающей среды в результате незаконного оборота или непреднамеренного перемещения радиоактивных материалов. Высокая чувствительность приборов позволяет сканировать габаритные объекты, такие как транспортные средства и контейнеры. Стандарт устанавливает требования к общим характеристикам таких приборов, методам испытаний, радиационным характеристикам и электрической безопасности.

Серия стандартов на портальные мониторы включает в себя следующие стандарты:

– Стандарт IEC 62484:2010[8] определяет эксплуатационные требования для спектроскопических портальных мониторов для обнаружения и идентификации противозаконной торговли радиоактивными материалами. Спектроскопия на базе портальных мониторов позволяет обнаруживать гамма и нейтронное излучение и идентифицировать гамма-излучающие радионуклиды, которые могут присутствовать на человеке, транспортных средствах, контейнерах или пакетах, находящихся в статическом или динамическом режиме. Стандарт устанавливает требования к рабочим характеристикам, общим характеристикам, методам испытаний, радиационным характеристикам и электрической безопасности.

– Стандарт IEC 62244:2006 [9] определяет характеристики для встроенных мониторов, предназначеннных для обнаружения радиоактивных и специальных ядерных материалов на государственных границах, а именно для обнаружения гамма и нейтронного излучения в объектах / контейнерах или транспортных средствах. Стандарт устанавливает характеристики и методы испытаний для мониторов, экологические требования к их использованию и требования к документации.

Разработанный комитетом стандарт IEC 62755:2012 [10] позволяет обеспечить единый формат данных для приборов радиационного контроля, предназначенных для выявления незаконного распространения радиоактивных материалов и дает возможность идентифицировать полученные данные измерений прибора, не привязываясь к документации изготовителя.

В соответствии с Законом Украины «О стандартизации» инициативу в разработке национальных стандартов, гармонизации международных стандартов возложено на Технические комитеты Украины. Эксперты Технического Комитета Украины ТК 99 (ТК99) «Материалы и приборы для сцинтилляционной техники и техники, связанной с измерением ионизирующего излучения» принимают активное участие в работе комитета ТС 45 IEC, в рамках которого разрабатывают новые проекты международных стандартов и проводят экспертизу всех разрабатываемых в группах IEC TC 45 проектов международных стандартов. Функции секретариата ТК99 возложены на Институт сцинтилляционных материалов Национальной академии наук Украины.

Одним из первых разработанных экспертами ТК99 в IEC TC 45 стал стандарт IEC 62372:2006 [11], который распространяется на методы измерения основных показателей качества сцинтилляторов и изделий из них, а именно – «собственного разрешения и светового выхода», абсолютный метод измерения технического светового выхода упакованных сцинтилляторов на основе любого сцинтилляционного материала и устанавливает основные требования к аппаратуре и методам контроля основных параметров упакованных сцинтилляторов, которые предназначены для регистрации альфа-, бета-, гамма-, рентгеновского и нейтронного излучения.

Целью следующего стандарта IEC 60412 : 2014 [12] была стандартизация номенклатуры сцинтилляционных детекторов, в которую было заложено максимальное количество характеристик сцинтилляционной продукции, а также стандартные размеры сцинтилляторов, чтобы облегчить взаимозаменяемость сцинтилляторов. Этот стандарт позволяет экономить время и средства за счет применения уже разработанных схем обозначений, значительно упрощая поиск при заказе продукции, и помогает классифицировать сцинтилляционную продукцию. Данный стандарт уже нашел свое применение у производителей сцинтилляционной техники. Приведенную в стандарте номенклатуру сцинтилляторов использует для обозначений своей продукции Scionix (Голландия). По нашему мнению, все больше и больше фирм, выпускающих сцинтилляционную продукцию, будут использовать данные обозначения для своей продукции.

Еще одним немаловажным стандартом для сцинтилляционной техники является стандарт IEC 60462:2010 [13], который имеет большое значение как для производителей фотоумножителей, так ее потребителей, поскольку позволяет унифицировать подход к определению характеристик фотоумножителей.

Пересмотренный ТК 99 стандарт IEC 61453:2007 [14] стандартизирует методы калибровки и испытаний для детекторных систем на основе йодида натрия, активированного таллием, предназначенных для количественного и качественного анализа радионуклидов.

Все разработанные нами международные стандарты были гармонизированы ТК 99 в Украине методом перевода [15-18].

Активная работа в международных организациях по стандартизации, на сегодня, является необходимостью для предприятий, поскольку позволяет представлять интересы Украины на уровне разработки проектов международных стандартов, а значит дает возможность закладывать требования, которые удовлетворяют украинских производителей и потребителей, дает предприятиям возможность представлять свои интересы на международном уровне, получать информацию о том, какие технологии и материалы используются и будут применяться в будущем, а это дает возможность целенаправленно планировать модернизацию производственных мощностей предприятия, возможность использовать более современные методы контроля и испытаний для продукции, помогает сэкономить усилия на разработку уже стандартизированных продуктов и направить усилия на реальные инновации.

Литература:

- 1. Наказ Міністерства економічного розвитку і торгівлі України № 1493 «Про прийняття європейських та міжнародних нормативних документів як національних стандартів України, змін до національних стандартів України та скасування національних стандартів України» від 30 грудня 2014 р. [Електронний ресурс]. Режим доступу: http://search.ligazakon.ua 2. IEC 62618:2013 Radiation protection instrumentation Spectroscopy-based alarming Personal Radiation Detectors.
- 3. IEC 62694:2014 Radiation protection instrumentation Backpack-type radiation detector (BRD) for the detection of illicit trafficking of radioactive material.
- 4. IEC 62401:2007 Radiation protection instrumentation Alarming personal radiation devices (PRD) for detection of illicit trafficking of radioactive material.
- 5. IEC 62327:2006 Radiation protection instrumentation Hand-held instruments for the detection and identification of radionuclides and for the indication of ambient dose equivalent rate from photon radiation.
- 6. IEC 62533:2010 Radiation protection instrumentation Highly sensitive hand-held instruments for photon detection of radioactive material.

- 7. IEC 62534:2010 Radiation protection instrumentation Highly sensitive hand-held instruments for neutron detection of radio-active material.
- 8. IEC 62484:2010 Radiation protection instrumentation Spectroscopy-based portal monitors used for the detection and identification of illicit trafficking of radioactive material.
- 9. IEC 62244:2006 Radiation protection instrumentation Installed radiation monitors for the detection of radioactive and special nuclear materials at national borders.
- 10. IEC 62755:2012 "Radiation protection instrumentation Data format for radiation instruments used in the detection of illicit trafficking of radioactive materials.
- 11. IEC 62372:2006 Nuclear instrumentation Housed scintillators – Measurement methods of light output and intrinsic resolution
- 12. IEC 60412: 2014 Nuclear instrumentation Nomenclature (identification) of scintillators and scintillation detectors and standard dimensions of scintillators.
- 13. IEC 60462-2:2010 Nuclear instrumentation Photomultiplier tubes for scintillation counting Test procedures.
- 14. IEC 61453:2007 Nuclear instrumentation Scintillation gamma ray detector systems for the assay of radionuclides Calibration and routine tests .
- 15. ДСТУ IEC 62372:2009 Ядерне приладобудування. Сцинтилятори упаковані. Методи контролювання технічного світлового виходу та власної роздільної здатності (IEC 62372:2006, IDT). Приладобудування ядерне. Детектори сцинтиляційні. Номенклатура. Розміри сцинтиляторів.
- ДСТУ IEC 60412:2009 Приладобудування ядерне. Детектори сцинтиляційні. Номенклатура. Розміри сцинтиляторів (IEC 60412:2007, IDT).
- 17. ДСТУ IEC 60462:2014 Ядерне приладобудування. Фотоелектронні помножувачі для сцинтиляційного лічення. Методи випробування (IEC 60462:2010;IDT).
- 18. ДСТУ IEC 61453:2009 Приладобудування ядерне. Детектори гамма-випромінення сцинтиляційні для аналізу радіонуклідів. Калібрування та випробування (IEC 61453:2007, IDT).

ПРИМЕНЕНИЕ СЦИНТИЛЛЯЦИОННЫХ БЛОКОВ ДЕТЕКТИРОВАНИЯ ДЛЯ КАЛИБРОВКИ ПОЛЕЙ ГАММА–ИЗЛУЧЕНИЯ ПО МОЩНОСТИ ДОЗЫ Р.В. Лукашевич, В.Д. Гузов, Г.А. Фоков, В.А. Кожемякин

Научно-производственное унитарное предприятие «АТОМТЕХ», г. Минск, Республика Беларусь

Аннотация

Приведены состав и основные метрологические характеристики сцинтилляционных блоков детектирования фотонного излучения БКМГ-АТ1102 и БКМР-АТ1104, разработанных для метрологического обеспечения поверочных дозиметрических установок по мощности кермы в воздухе в диапазоне от 0,03 до 50 нГр/с и в интервале энергий фотонов от 5 кэВ до 1,5 МэВ. Описываются основные результаты исследований данных блоков детектирования во ФГУП «ВНИИМ им Д.И. Менделеева» на государственных эталонах Российской Федерации.

Введение

Поверка и калибровка дозиметрических установок фотонного излучения по мощности кермы в воздухе проводится с использованием эталонных полостных ионизационных камер объемом до 10 л, нижняя граница измерений которых соответствует единицам нГр/с. Но для высокочувствительных дозиметров радиационной защиты часто требуется проводить калибровку в диапазоне мощности кермы в воздухе до 0,03 нГр/с (0,1 мкГр/ч). В настоящее время необходимые для решения данной задачи значения мощности кермы в воздухе рассчитывают с использованием приближенного закона обратных квадратов расстояний. Расчет выполняется с учетом ослабления фотонного излучения в воздухе и распада радионуклидного источника от точек на дозиметрической установке с известным значением мощности кермы в воздухе, измеренным с помощью ионизационных камер (п. 6.1 ГОСТ 25935-83 Приложение 10). Данный подход может скрывать несколько серьезных проблем. В первую очередь это связано с неопределенностью влияния внешних факторов, геометрией поля фотонного излучения, ошибками при расчете расстояния или мощности дозы.

Блоки-компараторы фотонного излучения

Для проведения калибровки эталонных полей рентгеновского и гамма- излучений поверочных дозиметрических установок методом компаратора в УП «ATOMTEX» были разработаны высокочувствительные блоки-компараторы фотонного излучения на базе серийно выпускаемых сцинтилляционных блоков детектирования.

Блок-компаратор БКМГ-АТ1102 состоит из серийного спектрометрического блока детектирования гамма-излучения БДКГ-05М (NaI(Tl) Ø40×40 мм), блок-компаратор БКМР-АТ1104 – из серийного спектрометрического блока детектирования рентгеновского излучения БДКР-01М (NaI(Tl) Ø9×2 мм). Блоки-компараторы оснащены персональным компьютером со специальным прикладным программным обеспечением.

Метод исследования

Для создания на основе сцинтилляционных блоков детектирования БДКР-01М и БДКГ-05М блоков-компараторов использовался спектрометрический метод дозиметрии фотонного излучения на основе преобразования измеренного аппаратурного спектра. С помощью этого метода вычисления полная мощность дозы находится с использованием функции G(E) без применения восстановления спектра из измеренного амплитудного распределения фотонного излучения [1-3].



Рис.1 - Блоки-компараторы фотонного излучения (справа налево) БКМГ-АТ1102, БКМР-АТ1104 и ПК со специальным прикладным ПО

Суть метода преобразования аппаратурного спектра функцией G(E) в следующем. На основе заранее рассчитанных или измеренных функций отклика детектора на воздействие гамма-излучения заданной энергий и плотности потока определяется некоторая функция от энергии G(E). Используя эту функцию в качестве оператора, можно получить величину дозы непосредственно из текущего аппаратурного спектра. Применяя функцию G(E) к спектру фотонного излучения окружающей среды, общая мощность дозы может быть определена без информации о распределении радиоизотопов в окружающей среде.

Так как точное значение функции G(E) не может быть вычислено путем моделирования спектра, для повышения точности необходимо найти способ расчета с использованием фактически наблюдаемого в детекторе распределения амплитуд импульсов. В качестве распределения спектра сравнения сцинтиллятора NaI(Tl), используемого в настоящее время при вычислении функции G(E), используется спектр энергетических потерь для параллельного пучка гамма-излучения, определяемый теоретически методом Монте-Карло [4]. Для определения G(E) методом Монте-Карло рассчитываются аппаратурные функции отклика сцинтилляционного детектора на излучение моноэнергетических фотонных источников, а также другие характеристики. Далее весь энергетический диапазон регистрации разбивается на энергетические интервалы, для которых вычисляется функция G(E) с применением линейной интерполяции.

Для определения функции преобразования G(E) были рассчитаны аппаратурные функции отклика блоков детектирования на излучение параллельного моноэнергетического потока фотонов с энергиями от 5 до 350 кэВ для БДКР-01М и от 20 до 3000 кэВ для БДКГ-05М. Расчет проводился по методу Монте-Карло с помощью программного комплекса SNEGMONT (Scattering of Nuclons, Electrons,Gamma by MONTe-Carlo), который был разработан в Беларуси [5].

На основе смоделированных функций отклика для нескольких десятков различных исходных монолиний были рассчитаны эффективности регистрации фотонов и чувствительности детекторов NaI(Tl) $\varnothing 40 \times 40$ мм и NaI(Tl) $\varnothing 9 \times 2$ мм.

Полученные аппаратурные функции отклика на моноэнергетическое излучение фотонов в диапазоне энергий от 5 до 3000 кэВ представляют собой спектральное распределение параллельного пучка фотонов. Таким образом, весь энергетический диапазон регистрации разбивается на энергетические интервалы, для которых вычисляется функция G(E) с применением линейной интерполяции.

Полученные результаты использованы в качестве базовых данных для оценки дозовой энергетической зависимости чувствительности сцинтилляционных детекторов и определения операторов преобразования «спектр-доза» для измерения мощности кермы в воздухе, мощности амбиентного эквивалента дозы и мощности экспозиционной дозы.

Расчеты оператора «спектр-доза» производятся в среде MathCAD с использованием интеллектуального алгоритма, позволяющего подбирать энергетические интервалы и минимизировать погрешность функции преобразования G(E).

Результаты исследований

Для подтверждения метрологических характеристик блокакомпаратора были проведены исследования, а позже выполнена калибровка во ФГУП «ВНИИМ им Д.И. Менделеева» на государственных эталонах РФ по мощности кермы в воздухе: эталонной установке рентгеновского излучения УЭД 50-320 и УЭД 5-50М из состава ГЭТ 8-2011, эталонной установке гамма-излучения УИЭЗ с использованием источников гамма-излучения ⁵⁵Fe, ¹⁰⁹Cd, ²⁴¹Am, ⁵⁷Co, ¹³⁷Cs, ²²⁶Ra, ⁶⁰Co из состава ГВЭТ 8-2.

Зависимость показаний блока-компаратора БКМР-АТ1104 от мощности кермы в воздухе была исследована в полях гамма-излучения радионуклидного источника из ²⁴¹Am (59,6 кэВ) в диапазоне от 0,4 до 10 нГр/с. Зависимость показаний блока-компаратора БКМГ-АТ1102 от мощности кермы в воздухе была исследована в полях гамма-излучения радионуклидных источников из ¹³⁷Cs (662 кэВ) в диапазоне от 0,03 до 50 нГр/с. Результаты зависимости показаний БКМР-АТ1104 и БКМГ-АТ1102 от мощности кермы в воздухе представлены на рисунках 2 и 3. Результаты исследований показали отклонение от линейности в пределах ± 3% в указанных диапазонах мощностей кермы в воздухе.

Энергетическая зависимость чувствительности блока-компаратора БКМГ-АТ1102 была исследована в диапазоне средних энергий фотонов от 48 до 1250 кэВ с использованием рентгеновского и гамма-излучений. Энергетическая зависимость чувствительности БКМГ-АТ1102 в данном диапазоне энергий не превышает ± 6% (рисунок 4).

Энергетическая зависимость чувствительности блока-компаратора БКМГ-АТ1104 была исследована в диапазоне средних энергий фотонов от 5 до 222 кэВ с использованием рентгеновского и гаммаизлучения. Энергетическая зависимость чувствительности БКМГ-АТ1102 в диапазоне энергий от 5 до 20 кэВ не превышает \pm 15%, в диапазоне от 20 до 222 кэВ не превышает \pm 5% (рисунок 5).



Рис.2 – Зависимость показаний БКМР-АТ1104 от мощности кермы в воздухе в полях гамма-излучения радионуклидного источника из ²⁴¹Am (59,6 кэВ)



Рис.3 – Зависимость показаний БКМГ-АТ1102 от мощности кермы в воздухе в полях гамма-излучения радионуклидного источника из $^{137}\mathrm{Cs}~(662~\mathrm{\kappa})\mathrm{B})$

ФГУП «ВНИИМ им Д.И. Менделеева» выполнил калибровку БКМГ-АТ1102 и БКМР-АТ1104, принадлежащих УП «АТОМТЕХ»,



Рис. 4 – Энергетическая зависимость чувствительности блока-компаратора БКМГ-АТ1102 в диапазоне энергий фотонов от 48 до 1250 кэВ



Рис. 5 - Энергетическая зависимость чувствительности блока-компаратора БКМГ-АТ1104 в диапазоне энергий фотонов от 5 до 222 кэВ

с выдачей сертификатов калибровки. Максимальное значение расширенной неопределенности полученных значений калибровочных коэффициентов, при коэффициенте охвата k = 2, блоков-компараторов БКМГ-АТ1102 и БКМР-АТ1104 не превышает 4 %. В настоящее время несколько подобных блоков-компараторов рентгеновского и гамма-излучения поставлены и успешно используются во ФГУП «ВНИИМ им Д.И. Менделеева» и в УП «АТОМТЕХ».

Заключение

Применение сцинтилляционных блоков детектирования в качестве блоков-компараторов позволяет получать спектрометрическое распределение измеряемого фотонного излучения, оценивать вклад рассеянной компоненты или пика полного поглощения.

Алгоритм работы блоков-компараторов обеспечивает непрерывность процесса измерения мощности дозы, вычисление результатов измерений мощности дозы и оперативное представление получаемой информации на экране компьютера, статистическую обработку результатов измерений, сохранение результатов измерений мощности дозы.

Результаты определения метрологических характеристик и калибровок блоков-компараторов во ФГУП «ВНИИМ им Д.И. Менделеева» показывают, что использование специально отобранных сцинтилляционных блоков детектирования с высокой стабильностью измерительного тракта и лучшим разрешением, а также применение описанного выше подхода с использованием функции G(E) позволяют использовать их в метрологии фотонного излучения для поверки рабочих эталонов и средств измерений, калибровки полей фотонного излучения низкой интенсивности по мощности кермы в воздухе в интервале энергий фотонов от 5 до 1500 кэВ с погрешностью не более 5 - 7 %.

Список литературы:

 Moriuchi, S. A new method of dose evaluation by spectrumdose conversion operator and determination of the operator / S. Moriuchi // JAERI 1209, Japan Atomic Energy Research Institute (1970). (in Japanese)

- Moriuchi, S. Determination of spectrum-dose conversion operator for spherical NaI(Tl) scintillators / S. Moriuchi, T. Nagaoka, S. Sakamoto, K. Saito // JAERI-M 8092, Japan Atomic Energy Research Institute (1972). (in Japanese)
- Бабенко, В.В. Спектрометрический метод измерения поглощенной дозы гамма-излучения с помощью NaI(Tl) детектора / В.В. Бабенко, А.Г. Исаев и др. // Сборник материалов XI ежегодного семинара «Спектрометрический анализ. Аппаратура и обработка данных на ПЭВМ». - Обнинск: ФГОУ «ГЦИПК», 2005.- с.67-77.
- Saito, K. Monte Carlo calculation of accurate response functions for a NaI(Tl) detector for gamma rays / K. Saito, S. Moriuchi // Nuclear instruments and methods. - № 185, 1981 – p. 299-308
- Фоков, Г.А. Расчет аппаратурных функций отклика стандартного NaI детектора гамма-излучения с помощью универсального программного кода SNEGMONT / Г.А. Фоков, Г.И. Шульгович // Сборник материалов XIV ежегодного семинара «Спектрометрический анализ. Аппаратура и обработка данных на ПЭВМ». – Обнинск: ФГОУ «ГЦИПК», 2008. – С. 145-158

РАЗРАБОТКА МОДЕЛИ ИСТОЧНИКА ИЗЛУЧЕНИЯ ДЛЯ МЕДИЦИНСКИХ ДИАГНОСТИЧЕСКИХ РЕНТГЕНОВСКИХ АППАРАТОВ

К.О. Макаревич, В.Ф. Миненко, С.А. Кутень, К.А. Веренич

НИУ «Институт ядерных проблем» БГУ, Минск, Беларусь

1 Введение

Для успешного лечения многих заболеваний необходимо иметь возможность выявлять их на ранней стадии развития. По этой причине в клинической практике интенсивно растет число проводимых медицинских интроскопических исследований, которые включают в себя множество методик: традиционные рентгенологические исследования, радионуклидная диагностика, магнитно-резонансная томография, ультразвуковое исследования и др. Каждый из методов имеет свои достоинства и недостатки и, как следствие, характеризуется определенными условиями для применимости и пределами диагностических возможностей. Однако наиболее эффективным и часто используемым направлением лучевой диагностики остаются рентгенологические исследования. В соответствии с [1] ежегодное число диагностических рентгеновских исследований во всем мире в 2007 году составляло примерно 3,6 миллиарда, и с тех пор оно постоянно растет. Очевидно, что при этом повышается и радиационная нагрузка на население, что приводит к увеличению рисков онкологических заболевания и наследственных патологий. С целью минимизации подобных рисков все больше и больше исследователей в области радиационной безопасности начинают заниматься вопросами разработки наиболее надежных методов оценки доз облучения и оптимизации лучевых нагрузок на пациентов.

Сложность решаемых задач заключается в том, что дозы, получаемые органами и тканями в процессе рентгенологических исследований, не могут быть измерены непосредственно с помощью дозиметров. Также следует учитывать, что дозы облучения органов и тканей зависят от множества параметров: напряжения и тока рентгеновской трубки, длительности облучения, общей фильтрации облучения, расстояния между источником излучения и облучаемой поверхностью, размера и положения поля облучения на пациенте, ростовесовых показателей самого пациента. Однако данную задачу можно решить, если провести Монте-Карло моделирование процесса переноса рентгеновского излучения в теле пациента для конкретных параметров процедуры облучения.

Метод Монте-Карло широко используется для целей дозиметрии рентгенологических исследований в медицине. Так, на основании результатов Монте-Карло моделирования был создан ряд компьютерных программ (например, CALDose-X, PCXMC, Калькулятор рентгенолога [2-4]), решающих проблему оценки дозовых нагрузок на пациентов при выполнении рентгенологических обследований. Однако эти программы устарели, поскольку они разработаны на основе недостаточно адекватных математических моделей тела человека, а также без учета современных изменений в концепции эффективной дозы облучения. Поэтому вышеперечисленные программные продукты должны претерпеть соответствующие изменения, или же вместо них должны быть созданы новые программы, учитывающие последние рекомендации Международной комиссии по радиологической защите (МКРЗ) [5].

На начальных этапах создания программного обеспечения для оценки эффективных доз, получаемых пациентами в типичных процедурах облучения, необходимо решить задачу по разработке модели источника рентгеновского излучения для современных рентгеновских аппаратов, а также по адаптации компьютерной модели тела референтного человека для расчета переноса рентгеновского излучения в нем методом Монте-Карло.

Целью данного исследования являлось построение модели статического рентгенодиагностического аппарата и адаптация существующих компьютерных воксельных моделей стандартных мужчины и женщины к конкретной геометрии облучения.

2 Модель источника излучения для рентгеновского annapama.

Трубки медицинских рентгенодиагностических аппаратов проектируются для получения очень четких рентгеновских снимков. Для этого электроны, летящие от нити накала, должны фокусироваться на очень малой площади анода, которая называется фокальным пятном. Почти во всех современных диагностических трубках фокальное пятно по наклонной поверхности анода вытянуто по одному направлению. По этой причине пятно на выходе из трубки выглядит равной ширины по двум взаимно перпендикулярным направлениям, создавая эффект небольшого фокального пятна круговой формы.

Поверхность анода располагается под некоторым углом к направлению движения электронов для того, чтобы получаемые рентгеновские кванты вылетали из анода в определенном направлении. Трубка рентгеновского аппарата сделана в виде металлического цилиндра, из которого откачан воздух. Рентгеновское излучение выходит из трубки через боковое (иногда торцевое) окно из бериллиевого стекла.

На пути рентгеновского излучения в рентгеновских аппаратах устанавливаются формирующие устройства (коллиматор, тубус), которые создают форму поля облучения. Традиционно в статических рентгеновских аппаратах это поле имеет прямоугольную форму, в современных сканирующих флюорографических системах используют щелевую коллимацию.

Одним из важнейших элементов моделирования процедуры облучения является получение спектра рентгеновского излучения

рассматриваемого аппарата. В настоящее время можно выделить три основных направления получения спектра излучения: экспериментальные, теоретические (Монте-Карло моделирование) и полуэмпирические методы [6].

Каждый из методов имеет свои преимущества и недостатки, но более подходящий результат дает метод Монте-Карло моделирования, т.к. использует реалистичное представление о взаимодействии излучения с веществом и полное описание геометрии задачи. В настоящее время доступны несколько компьютерных кодов (EGS, MCNP, FLUKA, GEANT и др.), реализующих метод Монте-Карло для решения задач транспорта различных частиц в разных средах [7-10].

Однако полномасштабная Монте-Карло модель рентгеновской установки с детальным описанием рентгеновской трубки трудноосуществима из-за отсутствия полной информации производителя о составных элементах установки и их материальном составе. Кроме того, расчет подобной модели занимает достаточно большое время компьютерного счета, поскольку учитывает все физические процессы, которые включены в генерацию тормозного излучения, несмотря на то, что большинство из них не будет использовано для конечного спектра. По этой причине в данной работе рентгеновское излучение, возникающее на фокальном пятне, моделируется с помощью точечного источника с заданным энергетическим спектром излучения. Таким образом, из рассмотрения исключаются такие этапы моделирования, как эмиссия электронов из катода рентгеновской трубки, их ускорение и взаимодействие с материалом анода.

Достоверность компьютерного моделирования работы рентгеновского аппарата определяется, в первую очередь, использованием реалистичного спектра рентгеновского излучения. В настоящей работе для моделирования энергетического спектра рентгеновского излучения использована модель «TASMIP», которая считается наиболее подходящей моделью для моделирования типичных рентгенодиагностических исследований с использованием рентгеновской трубки с вольфрамовым анодом, работающей в диапазоне анодных напряжений 30-140 кВ [11]. Модель рентгеновского аппарата, включающая «TASMIP», не требует моделирования внутреннего устройства и режима работы рентгеновской трубки, однако для описания транспорта рентгеновских квантов в облучаемых средах необходимо задать следующие параметры:

- напряжение на аноде,
- расстояние источник-поверхность облучения,
- размеры поля облучения,
- общая фильтрация,
- пульсация анодного напряжения,
- расстояние источник-формирующее устройство,
- характеристики формирующего устройства.

В модели «ТАЅМІР» табулированной функцией $\Phi(E, d, V, \zeta)$ в единицах $\frac{D>B>=}{<\Box \cdot A \cdot : M \sqcup <<^2}$ задается флюенс фотонов на расстоянии R0=100 см от фокуса рентгеновской трубки, испускаемый источником в энергетическом интервале (E, E+dE), где dE = 1 кэВ и нормированный на 1 мАс при заданном напряжении V, его пульсации ζ и заданной фильтрации фотонов, выраженной эквивалентной толщиной d мм алюминия [11]. Изменение любого из приведенных параметров ведет к изменению результирующего спектра рентгеновского излучения. На рисунке 1 показаны спектры рентгеновской трубки, полученные для напряжения 120 кВ с нулевой пульсацией и для двух значений общей фильтрация 0 и 2,5 мм алюминия.

Для более реалистичного моделирования формирования пучка рентгеновского излучения необходимо учесть пульсацию анодного напряжения, которая характеризуется коэффициентом пульсации (ζ) вида:

$$\zeta = rac{V_{ ext{max}} - V_{ ext{min}}}{V_{ ext{max}}} \cdot 100\%$$
 ,

где V_{max}
и V_{min} – максимальное и минимальное значение анодного напряжения соответственно.



Рис. 1 – Энергетические спектры рентгеновской трубки в модели TASMIP для $V=120~{\rm kB}, \zeta=0, d=0~{\rm mm}$ и $d=2,5~{\rm mm}$ Al

Самый значительный эффект от наличия пульсаций напряжения, типичные значения которого составляют $\zeta \sim (5-10)\%$ [12], заключается не в энергетическом перераспределении поглощения излучения в фантоме, а в относительном уменьшении радиационного выхода источника при наличии пульсации. Это видно из рисунка 2, где приведены спектры «TASMIP»-источника в отсутствие и при наличии пульсации для напряжения 80 кВ в условиях отсутствия фильтрации и для типичного фильтра 2,5 мм. Наличие пульсации не сильно изменяет положение максимума спектра, но заметно уменьшает его амплитуду, и, как следствие, интенсивность излучения, в первом приближении пропорциональную площади под спектром. Количественно уменьшение площади под спектром зависит от фильтрации.

Поскольку в модели «TASMIP» функцией $\Phi(E, d, V, \zeta)$ задается флюенс фотонов на расстоянии R_0 =100 см от фокуса трубки, то для использования ее в качестве источника, расположенного вблизи фокального пятна, проводится ее перетабуляция.

С помощью описанной модели «TASMIP» к настоящему моменту в данном исследовании рассчитано более 200 спектров рентгеновского излучения, покрывающих диапазон напряжений от 30 до 140 кВ с общей фильтрацией от 0 до 5 мм алюминия. Особое



Рис. 2– Влияние пульсации напряжения на форму спектра излучения для «TASMIP»- источника (анодное напряжение 80 кВ)

внимание было уделено диапазону напряжений от 70 кВ до 90 кВ, т.к. этот диапазон напряжений наиболее часто используется при рентгенографии легких и флюорографии. Были получены спектры рентгеновского излучения для следующих параметров трубки: пульсация анодного напряжения 0, высокое напряжение от 70 кВ до 90 кВ с шагом 5 кВ, общая фильтрация алюминия от 2,5 мм до 5,0 мм с шагом 0,5 мм.

Для моделирования работы рентгеновского аппарата помимо рентгеновской трубки необходимо рассмотреть систему формирования выходного пучка излучения для создания необходимой конфигурации поля облучения. Формирующее устройство представляет собой несколько пар свинцовых шторок, расположенных на различном расстоянии от фокуса трубки. С помощью механизма управления шторками можно устанавливать прямоугольное поле облучения нужных размеров.

Модель рентгеновского аппарата с формирующим устройством показана на рисунке 3. Она включает в себя точечный источник излучения, расположенный в фокусе рентгеновской трубки, две пары свинцовых шторок и стекло. Верхняя пара свинцовых шторок обеспечивает раскрытие поля облучения вдоль оси X, а нижняя пара - в перпендикулярном направлении, вдоль оси Z.



Рис. 3 – Модель рентгеновской установки с двумя парами свинцовых шторок

3 Моделирование тела пациента в рентгенологических исследованиях

Оценка дозы облучения человека в процессе рентгенологического исследования основана на моделирования распределения поглощенной дозы в антропоморфной вычислительной модели (фантоме) тела человека, которая включает описание внутренней структуры, положения органов, плотности и состава тканей тела.

До сравнительно недавнего времени при моделировании процессов переноса ионизирующего излучения в теле человека использовались в основном так называемые математические фантомы [13,14]. В них тело человека вместе с наиболее существенными органами представлялось набором трехмерных тел, ограниченных поверхностями второго порядка (плоскости, сферы, эллипсоиды, цилиндры, конусы). Для геометрически более сложных органов использовались области являющиеся объединением или пересечением упомянутых простейших тел. Современная техника получения изображений человеческого тела по проекциям (компьютерная томография, магнитно-резонансная томография) предоставляет достаточно точную анатомическую информацию для построения вокселей (объемных ячеек) фантома, необходимого для моделирования. Такая модель может быть построена как для конкретного человека, так и для условного (референтного) человека [15,16].

МКРЗ для расчетов дозиметрических величин предложила использовать воксельные фантомы мужчины и женщины, которые были созданы на основе компьютерных томограмм 38-летнего мужчины и 43-летней женщины с размерами тела, близкими к стандартному (условному) человеку [17]. Условные воксельные фантомы МКРЗ соответствуют анатомическим данным стандартного человека, которые представлены в 89 Публикации МКРЗ [18].

Каждый фантом МКРЗ представляет собой модель тела человека, помещенного в прямоугольный параллелепипед, заполненный воздухом, и разделенный на ячейки одинакового размера. Каждая ячейка содержит в себе номер органа, к которому она принадлежит, а каждому органу соответствует свой материал (ткань), обозначающий содержимое этой ячейки. Ячейки, не принадлежащие к фантому, заполнены воздухом.

Данные фантомы содержат более 140 различных структур, состоящих из 50 типов тканей, для того, чтобы максимально соответствовать стандартному индивиду не только по месторасположению и форме органов, но также по составу вещества, из которого состоят органы и ткани тела. На рисунке 4 показаны условные фантомы стандартного мужчины и стандартной женщины.

В женском фантоме МКРЗ содержится более 14 миллионов вокселей (299×137×348). Размеры вокселя составляют 1,78 мм × 1,78 мм ×4,8 мм. Мужской фантом МКРЗ содержит более 7 миллионов вокселей ($254 \times 127 \times 222$). Размеры вокселя составляют 2,14 мм ×2,14 мм ×8 мм.

Анализ результатов пробного моделирования распределения поглощенной энергии в воксельном фантоме показал, что в воксе-


Рис. 4 – Референтные воксельные фантомы мужчины и женщины МКРЗ (воксели на рисунке сглажены) [19]

лях, непосредственно не попадающих в поле облучения, поглощенная энергия очень мала. На рисунке 5 показаны в трех плоскостях распределения поглощенной энергии рентгеновского излучения внутри мужского фантома при облучении грудной клетки.

Проведенный анализ позволил оптимизировать количество вокселей, включаемых в расчет дозового распределения. Так, в зависимости от типа рентгенологического исследования, рекомендуемых размеров поля облучения, расстояния от источника излучения до пленки и других параметров процедуры облучения



Рис. 5 – Распределение поглощенной энергии внутри мужского фантома при облучении грудной клетки (а –поперечный срез; б –корональный срез; в – сагиттальный срез)

специально разработанными программами CreatePhantomMale.nb и CreatePhantomFemale.nb из всего фантома выбираются только те слои, которые попадают в поле облучения. Кроме того, чтобы учесть вклад в дозу рассеянного излучения, к выбранной части фантома, определяемой полем облучения, были добавлены слои по 20 см к верхнему и нижнему краям. На рисунке 6 показана часть женского фантома, которая будет учитываться при моделировании процедур облучения грудной клетки, когда размер поля облучения 30 см×40 см.



Рис. 6 – Часть женского фантома, учитываемая при моделировании процедур облучения грудной клетки

4 Заключение

Моделирование разных аспектов медицинского облучения широко используется с привлечением различных компьютерных программ, реализующих метод Монте-Карло для описания взаимодействия излучения с различными средами. Важнейшую роль при определении дозиметрических характеристик процедуры облучения играет моделирование источника излучения и облучаемого человека.

В данной работе для моделирования спектра рентгеновского излучения использована модель рентгеновской трубки с вольфрамовым анодом «TASMIP». В результате выполнения исследования разработана модель рентгеновского аппарата, включающая формирующее устройство с двумя парами шторок. Рассчитано более 200 спектров рентгеновского излучения, покрывающих диапазон напряжений от 30 до 140 кВ с общей фильтрацией от 0 до 5 мм алюминия. Особое внимание было уделено диапазону напряжений от 70 кВ до 90 кВ, т.к. этот диапазон напряжений наиболее часто используется при рентгенографии легких и флюорографии.

Для оценки распределения поглощенной дозы рентгеновского излучения в теле человека использованы референтные воксельные фантомы мужчины и женщины, рекомендуемые МКРЗ для различных дозиметрических расчетов. Фантомы адаптированы для моделирования различных процедур рентгенологических исследований таким образом, чтобы минимизировать непродуктивное время компьютерного счета без изменения погрешностей оценки доз в облучаемых органах и тканях.

Полученные результаты служат основой для выполнения последующих этапов работы по Монте-Карло моделированию процесса облучения человека во время рентгенологического исследования и оценке с помощью кода MCNP пространственного распределения поглощенной дозы рентгеновского излучения в теле человека в зависимости от характеристик медицинского рентгеновского аппарата и процедуры облучения.

Литература

- 1. UNSCEAR 2008 Report: Volume 1.
- Kramer, R. CALDose_X a soft-ware tool for assessment of organ and tissue absorbed doses, effective dose and cancer risks in diagnostic radiology / R. Kramer, H.J. Khoury, J.W. Vieira // Phys. Med. Biol. – 2008. – Vol. 53. – P. 6437-6459.
- 3. Tapiovaara M., Siiskonen T. PCXMC. A Monte Carlo program for calculating patient doses in medical x-ray examinations. STUK-A231. Helsinki 2008, 49 pp.
- В.Ф. Миненко, К.А. Веренич, А.А. Хрущинский, С.А. Кутень, Г.В. Гацкевич, Т.В. Лазурко. Метод оценки доз облучения пациентов при рентгенологических исследованиях.// Медикобиологические проблемы жизнедеятельности. 2010. № 1(3). С. 42-49.

- International Commission on Radiological Protection. The 2007 Recommendations of the International Commission on Radiological Protection ICRP Publication 103. Ann. ICRP 37 (2-4), Pergamon Press, 2007.
- BR Lankipalli, WD McDavid, SB Dove, E Wieckowska, RG Waggener, JR Mercier Comparison of five methods for the derivation of spectra for a constant potential dental X-ray unit. DentomaxillofacialRadiology 2001, 30, 264-269.
- 7. Kawrakow I., Rogers D. "The EGSnrc code system: Monte Carlo simulation of electron and photon transport." (2000).
- Briestmeister J. F., Ed. MCNP-A General Monte Carlo N-Particle Transport Code, Version 4B2. // Los Alamos, NM: Los Alamos National Laboratory. – 1997 – 736 p.
- 9. Fasso, A., A. Ferrari, and P. R. Sala. "Electron-photon transport in FLUKA: status." Advanced Monte Carlo for Radiation Physics, Particle Transport Simulation and Applications. Springer Berlin Heidelberg, 2001. 159-164.
- 10. GEANT-4 User Guide: http://geant4.web.cern.ch/geant4/ UserDocumentation/UsersGuides/ForApplicationDeveloper/fo/ BookForAppliDev.pdf.
- 11. J.M.Boone and J.A.Seibert. An accurate method for computergenerating tungsten anode x-ray spectra from 30 to 140 keV.// Med.Phys. 24(1),1661-1670 (1997).
- 12. M.R.Ay, M.Shahriari, S.Sakrar, M.Adib and H.Zaidi. Monte Carlo simulation of x-ray spectra in diagnostic radiology and mammography using MCNP4C. //Phys.Med.Biol. 49(2004) 4897-4917.
- 13. International Commission on Radiation Units and Measurements. Phantoms and computational models in therapy, diagnosis and protection. Bethesda, MD:ICRU Report 48; 1998
- 14. Cristy, M. Mathematical phantoms representing children of various ages for use in estimates of internal dose, ORNL/ NUREG/TM-367, ORNL, Oak Ridge, TN, 1980.

- 15. Zubal I.G., Harrel C.R., Smith E.O., Rattner Z., Gindi G. and Hoffer P.B., Computerized three-dimensional segmented human anatomy, Med. Phys. 21(2), 299-302 (1994)
- Zankl M., Petoussi N. and Wittmann A., The GSF Voxel Phantom and their Application in Radiology and Radiation Protection, Proc. Workshop on Voxel Phantoms, NRPB Chilton, UK 6-7 July 1995. Ed. P.J. Dimbylow (1996).
- 17. International Commission on Radiological Protection. Adult Reference Computational Phantoms. ICRP Publication 110. Ann. ICRP, Pergamon Press, 2009.
- International Commission on Radiological Protection. Basic Anatomical and Physiological Data for Use in Radiological Protection: Reference Values, ICRP Publication 89, Pergamon Press, 2003.
- 19. International Commission on Radiological Protection. Conversion Coefficients for Radiological Protection Quantities for External Radiation Exposures. ICRP Publication 116. Ann. ICRP 40 (2-5), Pergamon Press, 2010.

МОДЕЛИ РАДИАЛЬНОГО ОТРАЖАТЕЛЯ ДЛЯ ПОДГОТОВКИ МАЛОГРУППОВОЙ БИБЛИОТЕКИ СЕЧЕНИЙ ДЛЯ ДИФФУЗИОННОГО КОДА DYN3D C ПОМОЩЬЮ MOHTE-КАРЛО КОДА SERPENT

К.И. Ушева¹, С.А. Кутень¹, А.А. Хрущинский¹, Л.Ф. Бабичев²

 НИУ «Институт ядерных проблем» Белорусского государственного университета, Минск, Беларусь
ГНУ «Объединенный институт энергетических и ядерных исследований - Сосны» НАН Беларуси, Минск, Беларусь

1 Введение

Для анализа стационарных и переходных процессов в активной зоне реактора типа ВВЭР широко применяется крупносеточный код DYN3D [1], основанный на решении уравнения переноса в диффузионном приближении. Для моделирования нейтронно-физических процессов в активной зоне реактора с помощью кода DYN3D необходимо создать константное обеспечение, которое можно подготовить с помощью спектральных кодов, как детерминистических – HELIOS, CASMO, TBC-M, так и Монте-Карло – SERPENT [2]. При моделировании активной зоны реактора для определения граничных условий важное место занимает описание отражателя.

Целью работы является создание физической модели и расчет характеристик отражателя для реактора типа ВВЭР в коде SERPENT (версия 2.1.27). Расчет библиотеки сечений для одной TBC в коде SERPENT не составляет никаких трудностей, т.к. в этой модели присутствует источник нейтронов в виде топливных таблеток внутри твэлов. Для отражателя необходимо создать модель, в которой бы имелся отражатель и часть TBC, выступающих в качестве источника нейтронов. Кроме этого, необходимо учитывать распределения потоков тепловых и быстрых нейтронов в созданной модели, оно должно быть близко к их распределению в полной трехмерной модели активной зоны.

В данной работе предложены модели аксиального и радиального отражателей для реактора типа ВВЭР для корректного расчета и создания библиотеки сечений в коде SERPENT для диффузионного кода DYN3D. Модель аксиального отражателя, а так же все необходимые данные по реактору ВВЭР-1000 были взяты из статьи [3].

Библиотека сечений топливной части модели активной зоны реактора, необходимая для кода DYN3D, определяется следующими характеристиками TBC, которые рассчитываются в двухгрупповом энергетическом приближении (при разных значениях выгорания):

- коэффициенты диффузии (D_{1.2});
- сечения увода (Σ_{rem1.2});
- сечения генерации нейтронов деления (νΣ_{f1.2});
- сечения энерговыделения ($\epsilon \Sigma_{f1,2}$);
- сечения перехода из одной энергетической группы в другую (Σ_{S1-2});
- ADF1,2 (факторы разрывности потока на границе «TBC-TBC»);
- выходы йода (γ_I), ксенона (γ_{Xe}) и прометия (γ_{Pm});
- групповые сечения поглощения ксенона ($\sigma_{Xe1,2}$) и самария ($\sigma_{Sm1,2}$).

Для отражателя необходимо аналогичное константное обеспечение. Так как, в составе отражателя нет делящихся материалов (источника нейтронов), то в его константном обеспечении отсутствуют величины связанные с энергетической составляющей, такие как сечения генерации нейтронов деления, сечения энерговыделения, и величины связанные с отравлением (выходы йода, ксенона и прометия, групповые сечения поглощения ксенона и самария). Так же нет зависимости от выгорания. Для коррекции ошибок процедуры гомогенизации, которая лежит в основе нодального метода в коде DYN3D, необходимы соответствующие корректирующие коэффициенты на границах «TBC-TBC», «TBC-отражатель» (так называемые ADF и RDF факторы).

Для создания константной базы для кода DYN3D необходимо смоделировать и рассчитать константы для каждого типа TBC, входящих в состав активной зоны реактора. Сначала константы для TBC рассчитываются с учетом их зависимости от выгорания. Затем необходимо рассчитать зависимость этих констант по каждой ступени выгорания от следующих параметров:

- температуры топлива;
- температуры теплоносителя;
- концентрации борной кислоты в теплоносителе;
- плотности теплоносителя.

2 Модели аксиального и радиального отражателей

Активная зона реактора окружена радиальным и аксиальным отражателем. Радиальный отражатель реактора типа ВВЭР состоит из выгородки, внутрикорпусной шахты, теплоносителя и корпуса реактора. Для расчета констант в процессе моделирования на данную область накладывается сетка из шестиугольных ячеек, по размеру равные размеру ТВС (шаг 23,6 см). В соответствии с работой [4] и с учетом 60° симметрии активной зоны и конструкционных особенностей выгородки реактора ВВЭР-1000, можно выделить пять типов ячеек радиального отражателя с разным материальным составом внутри них. На рис. 1 представлена трехмерная модель в коде SERPENT активной зоны реактора с отражателем (а,б).

Для расчета двухгрупповых сечений, были созданы двумерные модели для пяти типов радиального отражателя. Они состоят из ячеек отражателя (R1.1-R5.1 и R1.2-R5.2), их внешнего окружения (S) и TBC (см. рис. 2). Модели радиального отражателя отличаются друг от друга из-за конструктивных особенностей выгородки активной зоны реактора. Из-за ограничений в возможностях кода



Рис.1. Трехмерная модель активной зоны реактора BBЭP-1000 в коде SERPENT.

SERPENT на всех внешних границах моделей используются отражательные граничные условия.

На рис. 2 представлены двумерные модели пяти типов радиального отражателя (а-д). В них расчетными ячейками являются ячейки R1.1-R5.1 (для первого слоя отражателя) и R1.2-R5.2 (для второго слоя отражателя).

3 Проверочные расчеты и сравнение результатов в кодах SERPENT и DYN3D/SERPENT

Для проверки правильности библиотек сечений, подготовленных с использованием представленных выше моделей аксиального и радиального отражателя, были проведены расчеты коэффициента критичности (Keff) и энерговыделения при следующих параметрах активной зоны реактора BBЭP-1000: температура топлива 900 К, плотность теплоносителя 0,764 г/см³ (при температуре теплоносителя 280,4 °C и давлении 15,7 МПа) и концентрация борной кислоты 6,75 г/кгH₂O. В коде SERPENT были рассчитаны необходимые сечения для всех типов TBC, входящих в первую топливную загрузку активной зоны реактора BBЭP-1000, и подготовлены соответствующие библиотеки сечений для кода DYN3D.



Рис.2. Двумерные модели радиального отражателя активной зоны реактора ВВЭР-1000 в коде **SERPENT**.

Все расчеты проводились в двухгрупповой версии DYN3D. Так как в этой версии нет возможности учесть всю матрицу сечений перехода из одной энергетической группы в другую, то необходимо корректировать сечения перехода из быстрой энергетической группы в тепловую группу.

В соответствии с работой [5] была проведена также корректировка значений факторов разрывности потока на границе «ТВСотражатель», учитывающая влияние близлежащих топливных сборок:

$$RDF = \frac{DF_{ref}}{Df_{fuel}} ADF \tag{1}$$

где DF_{ref} и DF_{fuel} – корректирующие коэффициенты на границе «TBC-отражатель» со стороны отражателя и со стороны топлива, соответственно, в модели отражателя; ADF – корректирующий коэффициент, рассчитанный для одной топливной ячейки на границе «TBC-TBC» в модели бесконечной решетки.

SERPENT	DYN3D/ SERPENT	Δ, pcm
1.00198	1.002757	-77.7

Таблица 1 – Сравнение значений К

Энерговыделение в периферийных сборках активной зоны реактора при использовании формулы (1) становится более корректным [5]. Проведение коррекции сечения перехода из быстрой энергетической группы в тепловую группу и факторов разрывности, при подготовке библиотеки сечений для ТВС и отражателя, обеспечивает хорошее согласие между расчетами Keff и энерговыделения в коде SERPENT и связке кодов DYN3D/SERPENT.

Для проверки рассчитанных сечений для отражателя активной зоны реактора в коде DYN3D создана модель всей активной зоны с двумя слоями радиального отражателя. Референсными для проверки являются результаты, рассчитанные в коде SERPENT. Результаты расчетов коэффициента критичности и энерговыделения в коде SERPENT сравниваются с аналогичными расчетами в DYN3D с использованием библиотек сечений, подготовленных с помощью кода SERPENT. Все расчеты проводятся при работе реактора на нулевой мощности.

В таблице 1 приведены расчетные значения коэффициента критичности для полной активной зоны, рассчитанные в кодах SERPENT и DYN3D/ SERPENT в референсной точке, указанной выше. Для сравнения значений Keff, полученных в двух кодах, в таблице 1 приведена их разность (Δ) в рст (1 рст = 10⁻⁵).

Распределения нормированных энерговыделений, рассчитанных в коде SERPENT и связке кодов DYN3D/SERPENT для 163 TBC, входящих в состав начальной топливной загрузки активной зоны реактора BBЭP-1000, приведены на рис. 4. В порядке следования сверху вниз обозначений на рисунке, первое значение означает номер TBC, второе – рассчитанное в коде SERPENT, третье – рассчитанное в коде DYN3D/SERPENT, четвертое – разность между вторым и третьим значением.

1,005 || 1,232 || 1,305 || 1,398 || 1,294 || 1,398 || 1,305 || 1,232 || 1,005 || 1,232 || 1,005 || 1,235 || 1,322 || 1,407 || 1,302 || 1,407 || 1,322 || 1,235 || 1,005 || 1,235 || 1,005 || 1,235 || 1,005 || 1,235 || 1,005 || 1,235 || 1,005 || 1,235 || 1,005 || 1,235 || 1,005 || 1,235 || 1,005 || 1,235 || 1,005 || 1,235 || 1,005 || 1,235 || 1,005 || 1,235 || 1,005 || 1,235 || 1,005 || 1,235 || 1,005 || 1,235 || 1,005 || 1,235 || 1,005 || 1,235 || 1,005 || 1,235 || 1,005 || 1,235 || 1,005 || 1,235 || 1,005 || 1,235 || 1,005 || 1,235 || 1,005 || 1,235 || 1,005 || 1,235 || 1,005 || 1,235 || 1,005 || 1,235 || 1,005 || 1,235 || 1,005 || 1,235 || 1,005 || 1,235 || 1,005 || 1,235 || 1,005 || 1,235 || 1,005 || 1,235 || 1,005 || 1,235 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,005 || 1,0 139 0,000 140 0,003 141 0,017 142 0,010 143 0,008 144 0,010 145 0,016 146 0,003 147 0,000 148 128 0.010 129 0.017 130 0.011 131 0.005 132 0.007 133 0.007 134 0.005 135 0.011 136 0.016 137 0.010 138 103 0.002 104 0.008 105 0.007 106 0.004 107 0.005 108 0.011 109 0.011 110 0.005 111 0.004 112 0.007 113 0.008 114 0.001 115 89 1,005 1,305 1,305 1,305 1,305 1,305 1,004 1,007 1,004 1,000 1,004 1,000 1,004 1,000 1,004 1,000 1,004 1,000 1,004 1,000 1,004 1,000 $\begin{matrix} 1005 \\ 1,005 \\ 1,322 \\ 0,768 \\ 1,000 \\ 0,768 \\ 1,000 \\ 0,769 \\ 0,760 \\ 0,760 \\ 0,770 \\ 0,7$ 0,000 49 0,017 50 0,005 51 0,004 52 0,011 53 0,008 54 0,011 55 0,011 56 0,008 57 0,011 58 0,004 59 0,005 60 0,017 61 0,00 1,233 1,398 0,746 0,916 0,607 0,880 0,768 0,880 0,607 0,916 0,746 1,398 1,253 1,244 1,408 0,739 0,914 0,596 0,872 0,760 0,872 0,596 0,914 0,739 1,407 1,244 -0.011 37 0.010 38 0.007 39 0.002 40 0.011 41 0.009 42 0.008 43 0.009 44 0.011 45 0.002 46 0.007 47 0.010 48 0.010 13 37 0010 38 0000 39 0002 40 001 41 0003 42 0088 43 0003 44 0011 45 0002 46 0001 47 0010 48 0 1,269 1,294 0,746 1,004 0,907 0,607 0,607 0,907 1,004 0,776 1,294 1,269 1,271 1,303 0,739 1,000 0,902 0,596 0,596 0,902 1,000 0,739 1,302 1,271 1,002 26 0,008 27 0,007 28 0,004 29 0,005 30 0,011 32 0,005 33 0,004 44 0,007 50 0,008 6 0,002 1,269 1,398 0,773 0,685 1,004 0,916 1,004 0,685 0,773 1,398 1,269 1,271 1,408 0,768 0,677 1,000 0,914 1,000 0,677 0,768 1,408 1,271 0,002 16 0,010 17 0,005 18 0,007 9,004 20 0,002 21 0,004 23 0,005 23 0,005 40 0,002 1,269 1,398 0,773 0,685 1,004 0,916 1,004 0,677 0,768 1,408 1,271 0,002 16 0,010 17 0,005 18 0,009 10,004 20 0,002 21 0,004 23 0,005 24 0,010 25 0,002 1,229 1,220 1,230 1,231 0,077 0,768 1,408 1,271 1,233 | 1,305 | 1,211 | 0,773 | 0,746 | 0,746 | 0,773 | 1,211 | 1,305 | 1,233 1,244 1,322 1,222 0,768 0,739 0,739 0,768 1,222 1,322 1,244 -0.011 7 0.017 8 0.011 9 0.005 10 0.007 11 0.007 12 0.005 13 0.011 14 0.017 15 0.011 1,005 1,233 1,269 1,269 1,233 1,005 1,005 1,244 1,271 1,271 1,244 1,005

Рис. 3. Нормированные значения энерговыделения в активной зоне, полученные в кодах SERPENT и DYN3D/SERPENT.

Как видно из рис. 3, максимальная разница в рассчитанных значениях нормированного энерговыделения во всей активной зоне реактора не превышает 1,7%, при этом ее среднее значение составляет 0,7%.

Заключение

Рассмотрены особенности моделирования отражателей для активной зоны реактора BBЭР-1000 в Монте-Карло коде SERPENT. Для аксиального отражателя разработана одномерная модель, а для радиального – двумерные модели, учитывающие конструкционные особенности выгородки реактора.

Проверка двухгрупповых констант отражателя проводилась с помощью сравнения значений коэффициента критичности и распределения энерговыделения для полной модели активной зоны реактора, рассчитанных в кодах SERPENT и DYN3D/SERPENT, при работе на нулевой мощности.

Для двухгрупповой версии DYN3D проведена корректировка как сечений рассеяния нейтронов из быстрой группы в тепловую, так и RDF факторов. Результаты расчетов коэффициента критичности и энерговыделения в DYN3D с использованием двухгрупповых библиотек сечений, рассчитанных с помощью SERPENT, хорошо согласуются с Монте-Карло расчетами полной модели активной зоны реактора в коде SERPENT. Разница рассчитанного в двух кодах коэффициента критичности не превышает 80 рст. Максимальная разница в рассчитанных значениях нормированного энерговыделения в топливных сборках не превышает 2%, при этом ее среднее значение по всей активной зоне не превышает 1%.

Результаты работы могут быть использованы в диффузионном коде DYN3D для моделирования стационарных и переходных нейтронно-физических процессов в активной зоне реактора при детерминистическом анализе безопасности реактора BBЭР-1000. Метод создания моделей для отражателя может быть использован при подготовке библиотеки сечений для активной зоны реактора проекта АЭС-2006.

Литература

U. Rohde, S. Kliem, U. Grundmann, S. Baier, Y. Bilodid, S. Duerigen, E. Fridman, A. Gommlich, A. Grahn, L. Holt, Y. Kozmenkov, S. Mittag. The reactor dynamics code DYN3D – models, validation and applications. Progress in Nuclear Energy, 2016. №89. P. 170-190

- J. Leppgnen. Serpent a Continuous-energy Monte Carlo Reactor Physics Burnup Calculation Code. User's Manual. VTT Technical Research Centre of Finland, 2015. 164 p.
- 3. T. Lotsch, V. Khalimanchuk, A. Kuchin. Proposal of a benchmark for core burnup calculation for a VVER-1000 reactor core. Munich, 2009. 57 p.
- I. Ovdiienko, M. Ieremenko, A. Kuchin, V. Khalimonchuk. Development of cross-section library for DYN3D code. Журнал Ядерная и радиационная безопасность, 2014. №4(64). С. 22-25
- K.S. Smith. Nodal diffusion methods: understanding numerous unpublished details. PHYSOR 2016, Sun Valley, ID, USA, May 1-5, 2016. P. 1227-1241

Национальная академия наук Украины Институт сцинтилляционных материалов

Состояние и перспективы развития функциональных материалов для науки и техники ®

АСПЕКТЫ СЦИНТИЛЛЯЦИОННОЙ ТЕХНИКИ

Под редакцией А.В. Гектина

Ответственный секретарь Е.В. Щербина Компьютерная верстка С.В. Баранник

Сдано в набор 26.05.2017. Подписано в печать 21.04.2017. Формат 60×84 1/16. Бумага типограф. Гарнитура Century Schoolbook. Печать высокая с ФПФ. Усл. печ. л. 16,5 Тираж 300 экз.

> Харьков 2017