

Гамма-детекторы в установках по обнаружению взрывчатых и наркотических веществ

Быстрицкий В.М., Зубарев Е.В., Красноперов А.В., Пороховой С.Ю., Рапацкий В.Л.,
Рогов Ю.Н., Садовский А.Б., Саламатин А.В., Салмин Р.А., Слепнев В.М.

*Объединенный институт ядерных исследований,
141980 г. Дубна, Московская обл.*

Андреев Е.А.
*ООО "Нейтронные технологии",
141980 г. Дубна, Московская обл.*

Аннотация

В Объединенном институте ядерных исследований разработаны и созданы гамма-детекторы на основе кристаллов ВГО, используемые в установках по обнаружению взрывчатых и наркотических веществ ((ВВ) и (НВ)). Приведены конструкция и основные характеристики детекторов. Описан метод программной температурной стабилизации отклика γ -детектора, позволяющий эксплуатировать детектор в диапазоне температур от -20°C до 50°C .

1. Введение

В Объединенном институте ядерных исследований (ОИЯИ) разработано и создано несколько экспериментальных установок по обнаружению и идентификации скрытых взрывчатых и наркотических веществ [1 - 3], в основе которых лежит метод меченых нейтронов (ММН).

Элементный состав исследуемого объекта определяется путем регистрации γ -квантов характеристического излучения, образующегося в процессе неупругого рассеяния $A(n,n')$ быстрых нейтронов с энергией 14.1 МэВ на ядрах облучаемого образца. Источником нейтронов с энергией 14.1 МэВ, образующихся в бинарной реакции $t(d,n)\alpha$ служит нейтронный генератор ИНГ-27 [4].

Сформулируем основные требования, которым должен отвечать детектор γ -квантов:

- иметь высокую эффективность регистрации γ -квантов в диапазоне энергий от 1 до 10 МэВ,
- иметь низкую чувствительность в нейтронном фону по отношению к эффективности регистрации γ -квантов
- обеспечивать линейность отклика,
- иметь хорошее энергетическое и временное разрешение в указанном диапазоне энергий γ -квантов
- обладать малым временем высвечивания сцинтиллятора
- быть радиационно стойким и обеспечивать стабильность параметров с течением времени

В настоящее время, для регистрации γ -излучения в указанном выше диапазоне энергий, наиболее часто используются детекторы на основе неорганических сцинтилляторов.

2. Неорганические сцинтилляторы, применяемые в ММН

Детальный обзор свойств сцинтилляторов, применяемых для регистрации γ -излучения в широком диапазоне энергий, может быть найден в работах [5, 6, 7]. В настоящей работе рассмотрены свойства сцинтилляторов, нашедших свое применение в установках по обнаружению ВВ и НВ на основе метода меченых нейтронов. Основные характеристики детекторов γ -квантов приведены в Таблице 1.

Таблица 1 Характеристики сцинтилляторов [8].

Тип Свойства	NaI(Tl)	BGO	LaBr ₃ (Ce)
Плотность, г/см ³	3,67	7,13	5,29
Эффективный атомный номер, Z	50	75	47
Радиационная длина, см	2,59	1,12	1.88
Время высвечивания, нс	245	300	20
Длина волны в максимуме спектра, нм	410	480	356
Относительный световыход, %	100	21	130
Коэффициент преломления	1,85	2,15	1,9
Температура плавления, °C	651	1050	788
Радиационная стойкость, Гр	10 ³	10 ³ -10 ⁴	-
Гигроскопичность	Да	Нет	Да

2.1 Иодит натрия (NaI(Tl))

В настоящее время иодит натрия активированный талием является одним из наиболее распространенных сцинтилляторов, применяемых для регистрации γ -излучения. Его отличительной особенностью является высокий световыход, определяющий относительное энергетическое разрешение порядка $\sim 7\%^1$ для кристаллов небольшого объема.

Благодаря достаточно хорошему энергетическому разрешению и доступности, γ -детекторы на основе NaI(Tl) активно применяются в ММН, в частности, в стационарных установках по досмотру крупногабаритных грузов [9, 10]. Зависимость эффективности регистрации γ -квантов с энергией 4439 кэВ (по пику полного поглощения) от размеров кристалла приведена в работах [10, 11] (идентификация ВВ и НВ основана на анализе характеристического излучения ядер углерода, азота и кислорода с энергиями 4439, 5100 и 6130 кэВ). Эффективность регистрации γ -квантов детектором с кристаллом NaI(Tl) размером 5"x5" в 6.5 раз больше соответствующей величины для кристалла 3"x3". К недостаткам кристалла NaI(Tl) следует отнести гигроскопичность и хрупкость, что ограничивает его применение в переносных досмотровых комплексах. По сравнению с другими сцинтилляторами одинакового объема, приведенными в Таблице 1, кристалл NaI(Tl) обладает наименьшей эффективностью регистрации γ -квантов при более высокой чувствительности к нейтронному фону.

¹ полная ширина пика на половине высоты по пику полного поглощения γ -квантов с энергией 662 кэВ

2.2 Бромид лантана ($\text{LaBr}_3(\text{Ce})$)

Характеристики γ -детекторов на основе кристалла бромида лантана $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ для регистрации γ -излучения в установках с использованием ММН изучались в работах [12] и [13]. Данный кристалл обладает большим световыходом и лучшим энергетическим разрешением ($\sim 2.9\%$ на линии 662 кэВ [12]) по сравнению с кристаллом $\text{NaI}(\text{Tl})$. Малое время высвечивания кристалла (~ 20 нс) позволяет применять γ -детекторы в условиях высокой скорости счета зарегистрированных событий без существенного ухудшения их энергетического разрешения. Временное разрешение системы (альфа – гамма) – совпадений (в качестве α -детектора используется кремниевый детектор, а γ -детектор – на основе $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$) составляет $\sim 1,1$ нс [13].

2.3 Германат висмута (BGO)

Благодаря высокой плотности и большому эффективному атомному номеру детекторы на основе кристалла германата висмута BGO обладают наибольшей эффективностью регистрации γ -квантов по сравнению с кристаллами, перечисленными в Таблице 1. Зависимость эффективности регистрации γ -квантов (по пику полного поглощения) от энергии γ -квантов представлена в Таблице 2 для трех кристаллов одинакового размера.

Таблица 2 Эффективность регистрации (по пику полного поглощения) γ -квантов с энергиями 0.368, 1.33 и 6 МэВ по отношению к эффективности регистрации γ -квантов с энергией 1.33 МэВ детектором с кристаллом NaI [12].

Энергия \ Кристалл	368 кэВ	1.33 МэВ	6 МэВ
NaI (3"x3")	2.822	1.000	0.259
LaBr_3 (3"x3")	2.941	1.362	0.457
BGO (3"x3")	3.587	2.514	1.363

2.3.1. Конструкция γ -детектора



Рис. 1 Внешний вид γ -детектора

Гамма-детектор в сборе показан на Рис.1. Кристалл BGO имеет форму цилиндра с размерами $\varnothing 76 \times 65$ мм. В качестве фотоэлектронного умножителя (ФЭУ) используется Hamamatsu R6233-100 с коэффициентом усиления $\sim 2,3 \times 10^5$ при напряжении питания ~ 1000 В. Световой контакт между входным окном ФЭУ и торцом кристалла BGO обеспечен оптически-прозрачным эпоксидным клеем. Температура кристалла контролируется аналоговым температурным датчиком TMP36 [14].

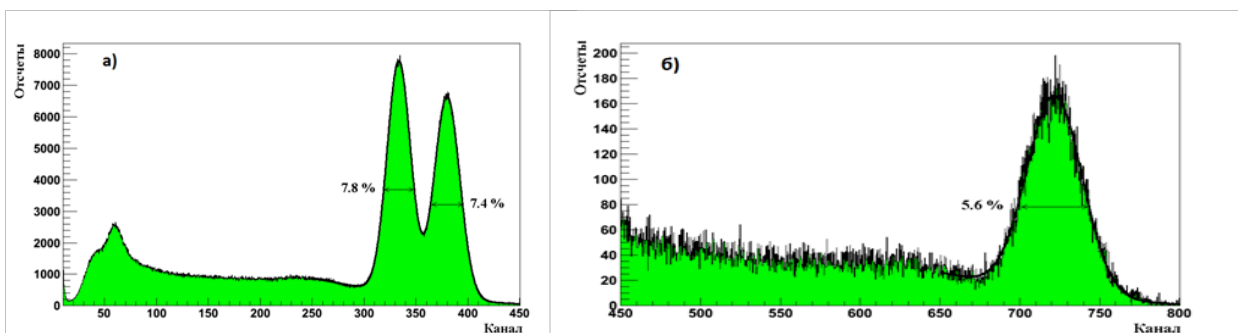


Рис. 2 Амплитудный спектр изотопа ^{60}Co . Пики полного поглощения γ -квантов с энергиями 1173 и 1332 кэВ (а) и суммарный пик, соответствующий энергии 2505 кэВ при одновременной регистрации детектором двух γ -квантов (б). Линией показан результат аппроксимации пиков функцией Гаусса. Фоновая подложка под пиком описывалась линейной функцией.

2.3.2. Характеристики γ -детектора

Линейность отклика детектора и его энергетическое разрешение в области энергий от 0.5 до 2.6 МэВ определялись по линиям γ -квантов изотопов стандартного набора ОСГИ². Ширина пиков полного поглощения γ -квантов (Таблица 3) и положение максимума в амплитудном спектре определялись из их аппроксимации функцией Гаусса. Фоновая подложка под пиком описывалась линейной функцией. Измеренная зависимость амплитуды световых выходов кристалла BGO от энергии гамма – кванта описывается прямой линией с точностью лучше, чем 0.4 %.

Таблица 3 Источники γ -излучения и энергии γ -квантов.

Изотоп	^{228}Th	^{228}Th	^{137}Cs	^{54}Mn	^{60}Co	^{60}Co	^{40}K	^{60}Co	^{228}Th
E_γ , кэВ	511	583	662	835	1173	1332	1461	1173+1332	2615

На Рис. 2 (а,б) приведены амплитудные спектры событий зарегистрированных γ -детектором при облучении его источником ^{60}Co .

Для энергий γ -квантов больше 2.6 МэВ, линейность отклика проверялась непосредственно по энергетическим спектрам γ -квантов, образующихся при облучении быстрыми нейтронами образцов из чистого углерода и имитатора взрывчатки - меламина ($\text{C}_3\text{H}_6\text{N}_3$). В интервале энергий от 2.6 до 6.1 МэВ отклонение от линейности не превышает 0,35 %.

Относительное энергетическое разрешение γ -детектора для изотопа ^{137}Cs составляет 9.8 % (Рис.3), а в случае облучения детектора γ -квантами с энергиями 1173 и 1332 (пики Co^{60}) - 7.8 % и 7.4 %, соответственно. На Рис. 4 представлена зависимость разрешения детектора от энергии γ -квантов. Измеренная зависимость с хорошей точностью описывается выражением вида $\sim E^{-0.5}$.

Амплитудное распределение событий, зарегистрированных γ -детектором при облучении образца углерода ^{12}C потоком быстрых нейтронов, приведено на Рис. 5 (а). Положение и ширина пиков с энергиями 4438 кэВ и 3927 кэВ (пик однократной утечки γ -квантов с энергией 511 кэВ) определялись путем аппроксимации их функциями Гаусса. Энергетическое разрешение γ -детектора на линии 4438 кэВ составляет 4.6 %.

² Образцовые Спектрометрические Источники Гамма Излучения

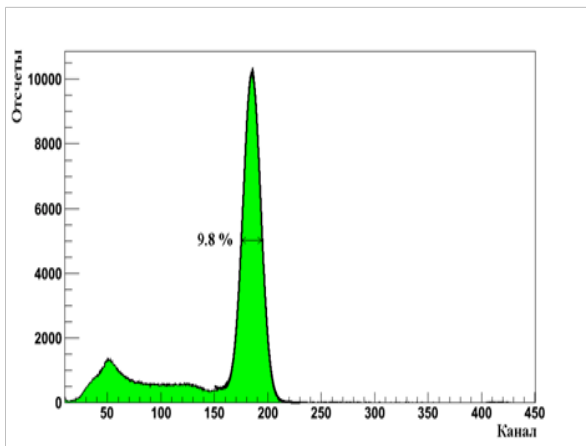


Рис. 3 Амплитудный спектр изотопа ^{137}Cs . Линией показан результат аппроксимации пика полного поглощения γ -квантов с энергией 662 кэВ функцией Гаусса. Фон под пиком описывался линейной функцией.

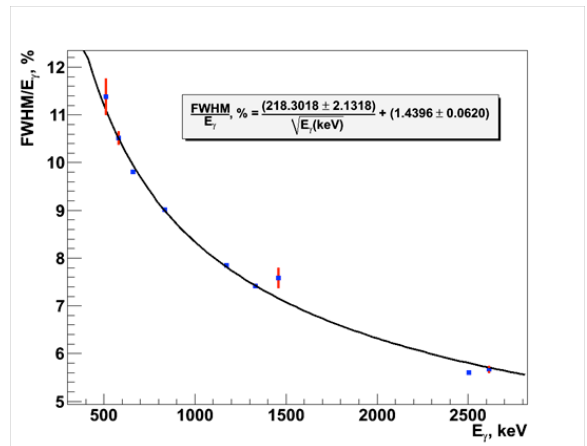


Рис. 4 Измеренная зависимость относительного энергетического разрешения детектора от энергии γ -квантов (точки) и ее аппроксимация функцией вида $\sim E^{-0.5}$ (линия).

Спектр временных интервалов между моментами регистрации γ -кванта характеристического излучения ядер углерода, измеренного в совпадениях с сигналом от α -детектора показан на Рис. 5 (б). Временное разрешение системы регистрации (α - γ)-совпадений составляет 3.2 нс.

3. Температурная стабилизация отклика γ -детектора

При эксплуатации γ -детекторов на основе кристаллов BGO необходимо учитывать достаточно резкую зависимость световыхода и времени высвечивания кристалла от температуры. При изменении температуры кристалла от 0 до 40 °С длительность сцинтилляционной вспышки уменьшается от 400 до 200 нс, а световыход падает более, чем в два раза [6]. Значение температурного коэффициента изменения световыхода зависит от качества кристалла и лежит в интервале от 1 до 1.6 %/°С.

Стабилизация энергетической калибровки, зависящей от световыхода, может быть

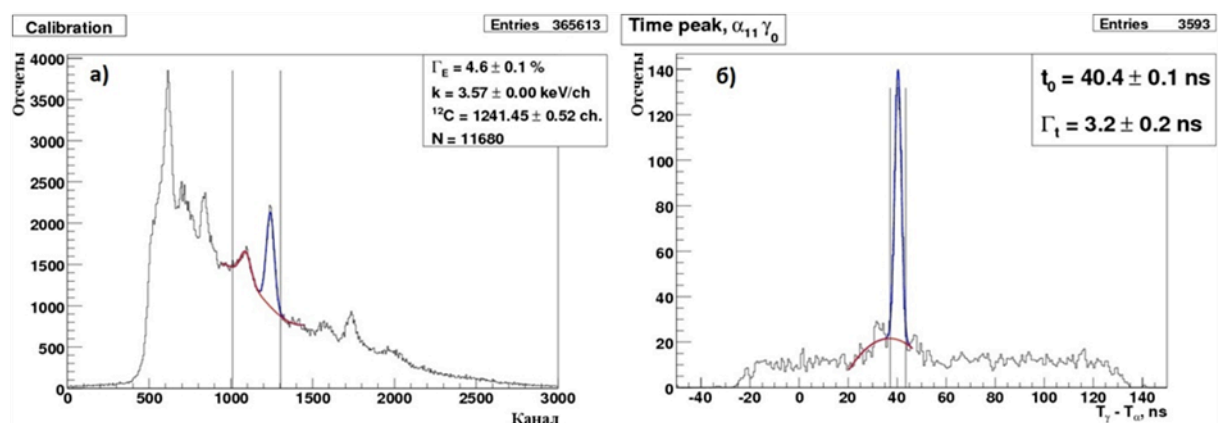


Рис. 5 а) Амплитудное распределение событий, зарегистрированных γ -детектором при облучении образца из чистого углерода ^{12}C потоком нейтронов с энергией 14.1 МэВ. Вертикальными линиями отмечен интервал энергий γ -квантов, соответствующий диапазону от 3927 до 4438 кэВ. Положение и ширина пиков определялись из их аппроксимации функцией Гаусса. Фон под пиками описывался полиномом второй степени. б) Спектр временных интервалов между моментами срабатывания γ - и α -детекторов, соответствующий указанному выше диапазону энергий регистрируемого характеристического излучения ядер углерода (вертикальные линии на Рис. 5 а)). Пик во временном распределении соответствует регистрации γ -квантов из образца углерода в совпадениях с сигналами от α -детектора, а подложка соответствует регистрации случайных совпадений.

достигнута за счет термостатирования кристалла. Этот способ нашел свое применение в лабораторных измерениях и в экспериментах на ускорителях и реакторах с использованием крупногабаритных стационарных детектирующих систем. В частности, разработанная система охлаждения [15] электромагнитного калориметра эксперимента L3, проводившегося на ускорителе LEP (ЦЕРН, Женева), поддерживала температуру более чем 11000 кристаллов BGO в интервале от 17 до 18 °C в течении всего времени работы установки.

Применение устройств стабилизации температуры γ -детекторов в портативных и мобильных досмотровых системах по обнаружению ВВ и НВ практически невозможно из-за существенных ограничений данных систем как по размерам, так и по массе. Альтернативным методом решения проблемы стабилизации энергетической калибровки канала регистрации характеристического ядерного γ -излучения является метод коррекции амплитудного отклика γ -детектора в зависимости от температуры кристалла BGO.

Автоматическая система компенсации температурного изменения световых выходов была реализована в установке PELAN [12]. Постоянство отклика детектора достигалось за счет изменения коэффициента усиления канала регистрирующей электроники в зависимости от температуры кристалла BGO с учетом измеренной температурной зависимости его световых выходов [16]. Точность стабилизации отклика в данном методе составила 7 % при изменении температуры в интервале от -5 до +45 °C.

В досмотровых системах, разработанных и созданных нами в Объединенном Институте Ядерных Исследований, применен программный метод коррекции отклика γ -детектора. Этот метод прост в реализации и настройке, применим к большому количеству каналов регистрации и, за исключением системы измерения температуры кристаллов BGO, не требует дополнительной аппаратуры. Коррекция сигнала с γ -детектора основана на измерении зависимости амплитуды отклика от показания температурного датчика, установленного на кристалле BGO.

Исследование зависимости отклика γ -детектора от температуры осуществлялось в климатической камере в интервале температур от -20 до +55 °C. В качестве источников γ -квантов использовались стандартные источники ^{137}Cs и Co^{60} . Длительность калибровки детектора составляла порядка 45 часов и включала в себя четыре последовательные фазы: охлаждение детектора до температуры -20 °C со скоростью 10 °C/час, самопроизвольное нагревание до комнатной температуры, нагревание до +55 °C со скоростью 10 °C/час и самопроизвольное остывание (Рис. 6). Значение температуры кристалла и амплитудный спектр срабатываний γ -детектора фиксировались системой приема и анализа данных с периодом в 10 секунд. Как показано на Рис. 6, при охлаждении кристалла BGO до -20 °C относительное смещение пика ^{60}Co от начального при комнатной температуре составляет +30 %, нагревание кристалла до +50 °C, напротив, сдвигает пик в сторону малых амплитуд на 40 %.

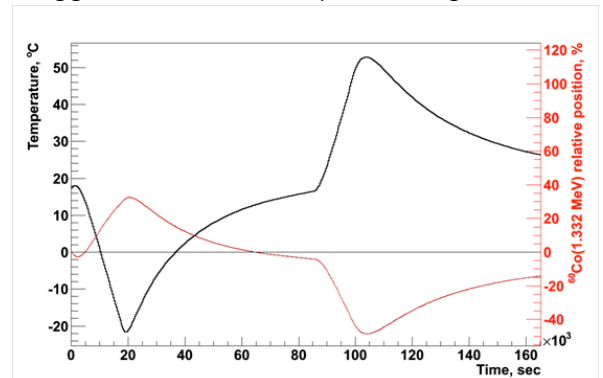


Рис. 6 Температура кристалла (жирная линия, шкала слева) и отклонение положения пика ^{60}Co (1.333 МэВ) (линия, шкала справа) в зависимости от времени с начала калибровки.

Коэффициент пересчета энергии γ -кванта в номер канала амплитудного спектра K_i восстанавливался по пикам ^{137}Cs и ^{60}Co для каждого интервала измерений i . Зависимость K_i от температуры T_i описывалась полиномом третьей степени вида $F(T) = N * (1 + \sum_{n=1}^3 P_n * T^n)$, где P_n - коэффициенты полинома, а N - нормирующий множитель. Параметры полинома определялись из минимизации функционала $\chi^2 = \sum_{i=1}^m \frac{(K_i - F(T_i))^2}{\delta K_i^2 + \delta F_i^2}$, где m - число измерений, δK_i - ошибка восстановления коэффици-

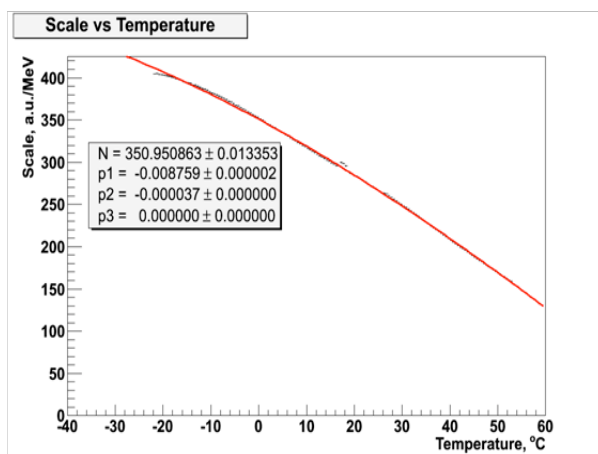


Рис. 7 Измеренная (точки) и параметризованная (линия) температурная зависимость коэффициента пересчета энергии в номер канала амплитудного спектра.

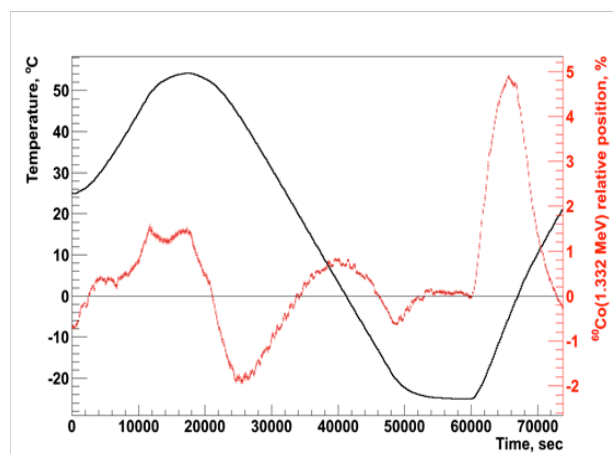


Рис.8 Температура кристалла (жирная линия, шкала слева) и скорректированное отклонение положения пика ^{60}Co (1.332 МэВ) (линия, шкала справа) в зависимости от времени с начала измерения.

ента, а δF_i - зависящее от температуры T_i и ошибки ее измерения δT_i вариация функции $F(T)$. Последовательность $F(T_i)$ описывает K_i с точностью лучше чем 4 %, отклонение максимумально в моменты перехода от нагревания к охлаждению и наоборот, что объясняется градиентом температуры внутри массивного кристалла, в то время как температура T_i измерена на границе кристалла.

Параметризованная температурная зависимость коэффициента пересчета энергии γ -кванта в номер канала спектра $F(T)$ показана на Рис.7. Функция $F(T)$ описывает измеренную температурную зависимость $K(T)$, полученную из усреднения значений K_i по интервалу температур от $T-0.25$ до $T+0.25$ °C, с точностью лучше чем 2 %.

Умножение отклика γ -детектора на функцию $F(T_o)/F(T)$, где T_o - задающая нормировку температура, компенсирует температурные изменения световыхода. Алгоритм коррекции был испытан в климатической камере с нормировкой на $T_o = 20$ °C. Как показано на Рис. 8 изменения отклика γ -детектора не превысили 2 % при охлаждении кристалла от +55 до -20 °C. Максимум отклонения составил 5 % во начале самопроизвольного нагрева кристалла до комнатной температуры после отключения охладителя камеры.

Результат применения программной стабилизации отклика γ -детектора в переносном досмотровом комплексе ДВИН-1 [3] показан на Рис. 11. За время работы комплекса из-за тепловыделения работающих нейтронного генератора и регистрирующей электроники γ -детектор нагрелся от 16 °C до 30 °C. При изменении температуры кристалла на 14 °C относительное смещение пика углерода ^{12}C ($E_\gamma=4438$ кэВ) в нескорректированном спектре составило ~20 %, в то время как в скорректированных данных его отклонение от положения при температуре 20 °C не превышает ± 1 %.

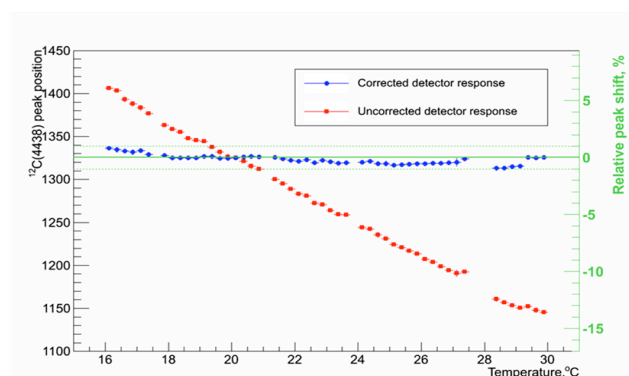


Рис. 11 Положение пика ^{12}C в амплитудном спектре скорректированного и нескорректированного отклика γ -детектора в зависимости от температуры кристалла.

5. Выводы

Высокая эффективность регистрации γ -излучения, механическая прочность и радиационная стойкость кристаллов BGO определили наш выбор в пользу данного сцинтиллятора при изготовлении γ -детекторов для установок по обнаружению и идентификации скрытых взрывчатых и наркотических веществ. Гамма-детектор на основе кристалла BGO обладает превосходной линейностью отклика. Энергетическое разрешение детектора на линии углерода 4438 кэВ составляет 4.5 %, при временном разрешении системы регистрации (α - γ)-совпадений 3.2 нс. Стабильность энергетической калибровки детектора в интервале температур от -20 до +55 °С обеспечивается разработанным нами методом температурной коррекции отклика γ -детектора. Данный метод применяется в настоящее время во всех установках созданных в ОИЯИ и обеспечивает стабильность энергетической калибровки на уровне 2 %, достаточную для надежного обнаружения ВВ и НВ в широком температурном диапазоне.

Список литературы

1. Bystritsky V. M. et al. *DViN - stationary setup for identification of explosives* // Physics of Particles and Atomic Nuclei, Letters. 2008, Vol.5, No. 5, pp. 743-751.
2. Быстрицкий В.М. и др. *Стационарный досмотровый комплекс ДВиН-2* // Письма в ЭЧАЯ, т.6, №6, стр. 586, 2009.
3. Сапожников М.Г. *Детектор взрывчатых веществ ДВИН-1 для нужд транспортной безопасности* // Транспортная безопасность и технологии, № 2 (29), 2012, стр. 169.
4. Bystritsky V. M. et al. *Portable Neutron Generator with 9-Section Silicon α -Detector* // Preprint of the Joint Institute for Nuclear Research E13-2006-36, Dubna, 2006.
5. Акимов Ю.К. *Фотонные методы регистрации излучений* — Дубна: Объединенный институт ядерных исследований, 2006.
6. M. Globus, B. Grinyov, Jong Kyung Kim *Inorganic Scintillators for Modern and Traditional Applications* — Kharkiv : Institute for Single Crystals, 2005.
7. Обзор отечественных радиометрических и спектрометрических систем, которые могут быть использованы для целей учета и контроля ядерных материалов // [ФГУП "Всероссийский научно-исследовательский институт автоматики им. Н.Л.Духова"] URL: <http://www.vniia.ru/rgamo/literat/obzor/doc/obzorrus.pdf>.
8. J. Beringer et al. *Particle Data Group* // Phys. Rev. D86, 010001 (2012).
9. B. Perot et al. // Nucl. Instr. and Meth. B, 261 (2007), p. 295.
10. G. Perret et al. // J. Phys.: Conf. Ser. 41 375 (2006).
11. M. Gierlik et al. // IEEE TRANSACTIONS ON NUCLEAR SCIENCE, VOL. 53, NO. 3, JUNE 2006, p.1737.
12. R. Sullivan, "An Advanced ESTCP PELAN System for Surface and Near-surface UXO Discrimination," FINAL REPORT April 2007.
13. C. Eleon et al. // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A629 (2011) 220–229.
14. TMP36 Техническое описание на английском // [Analog Devices] URL: http://www.analog.com/static/imported-files/data_sheets/TMP35_36_37.pdf.
15. M. Bosteels, R. Weill. // Nucl. Instr. and Meth. B 498 (2003) 165–189.
16. Phillip C. Womble et al. *PELAN 2001: Current Status of the PELAN Explosive Detection System* // Proceedings SPIE conference on Hard X-Ray and Gamma-Ray Detector Physics, San Diego 7/29-8/3/ (2001).