

ТЕХНИКА ЯДЕРНОГО ЭКСПЕРИМЕНТА

УДК 539.1.07

ОПТИМИЗАЦИЯ СТРУКТУРЫ ГЕТЕРОГЕННОГО СЦИНТИЛЛЯТОРА ДЛЯ РЕГИСТРАЦИИ ТЕПЛОВЫХ НЕЙТРОНОВ

© 2021 г. Е. С. Кузьмин^{а,*}, И. Ю. Зимин^а^а Лаборатория ядерных проблем им. В.П. Джелепова Объединенного института ядерных исследований
Россия, 141980, Дубна Московской обл., ул. Жолио-Кюри, 6

*e-mail: e_kuzmin@jinr.ru, e_kuzmin@mail.ru

Поступила в редакцию 16.04.2021 г.

После доработки 25.04.2021 г.

Принята к публикации 05.05.2021 г.

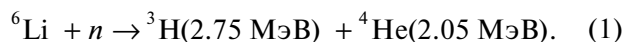
Представлены результаты моделирования и оптимизации композитного сцинтиллятора для регистрации тепловых нейтронов. Моделировалось взаимодействие тепловых нейтронов и γ -квантов с композитами, состоящими из расположенных в органической матрице фрагментов стеклянного сцинтиллятора, содержащего ${}^6\text{Li}$. Целью исследований было определение структуры композита, обладающего высокой чувствительностью к тепловым нейтронам и обеспечивающего эффективное подавление сигналов от γ -квантов. В ходе моделирования были определены оптимальные структурные параметры композита, такие как размер фрагментов и концентрация стекла. Согласно представленным результатам моделирования, оптимизированные композиты в условиях облучения тепловыми нейтронами могут обеспечить эффективность обнаружения нейтронов не менее 50% с чувствительностью к γ -квантам на уровне $\eta < 10^{-6}$.

DOI: 10.31857/S0032816221050220

ВВЕДЕНИЕ

Общие требования к нейтронным детекторам — это высокая эффективность регистрации нейтронов, низкая чувствительность к γ -излучению, возможность поддержания больших скоростей счета и обеспечение стабильности в длительных экспозициях. Содержащие литий стеклянные сцинтилляторы особенно привлекательны для этих целей. Сечение (n, α)-реакции на ядре ${}^6\text{Li}$ для тепловых нейтронов равно 940 б при энергии нейтрона 0.025 эВ, что обеспечивает эффективность регистрации на уровне 91% при толщине сцинтиллятора 2 мм. Быстродействие таких сцинтилляторов определяется малым временем высвечивания основной компоненты, как правило, не превышающим 60 нс.

Существенный недостаток таких сцинтилляторов — это присущая им γ -чувствительность, которая может исказить результаты измерений потока нейтронов в присутствии фонового γ -излучения. С материалом сцинтиллятора γ -излучение взаимодействует главным образом через комптоновское рассеяние с образованием электронов отдачи, тогда как в результате захвата нейтрона ядром ${}^6\text{Li}$ возникают тяжелые заряженные частицы с коротким пробегом:



Энергетический выход реакции (1) значительно превышает возможные потери энергии электронов, возникающих при взаимодействии γ -квантов с материалом сцинтиллятора. Однако из-за высоких удельных потерь энергии тяжелых заряженных частиц происходит “гашение” вспышки сцинтиллятора примерно с коэффициентом 0.32 [1], что соответствует электронному эквиваленту выделенной энергии $T_{ee} = 1.53 \text{ МэВ}$. При этом количество сцинтилляционных фотонов, образованных в событии захвата нейтрона в литиевом стекле, может сравниться с количеством сцинтилляционных фотонов, произведенных электронами при γ -взаимодействии. В результате импульсы от некоторых γ -квантов могут превысить по амплитуде установленный порог регистрации и будут неверно идентифицированы как захват нейтрона в детекторе. Метод дискриминации по форме импульса (Pulse Shape Discrimination — PSD) может уменьшить этот эффект, однако при этом усложняется детекторная система, и эффективность метода ограничена для высоких скоростей счета и в широком динамическом диапазоне амплитуд сигналов [2].

Один из подходов к уменьшению этой нежелательной γ -чувствительности заключается во встраивании фрагментов стеклянного сцинтиллятора, содержащего ${}^6\text{Li}$, в органическую матрицу. В такой структуре короткопробежные продук-

ты реакции захвата нейтрона ($R_\alpha = 6$ мкм, $R_t = 36$ мкм [3]) оставляют полностью свою энергию в сцинтилляторе, в то время как энерговыделение электронов с большими пробегами в значительной степени будет приходиться на нейтральный материал матрицы. Таким способом можно разделить амплитудные распределения от γ -квантов и нейтронов. Размер и расстояние между зернами стеклянного сцинтиллятора могут быть выбраны так, что свойства детектора будут соответствовать условиям конкретного эксперимента. Такого рода сцинтилляторы принято называть гетерогенными или композитными сцинтилляторами (композиты).

Композитные материалы, в состав которых входят зерна сцинтиллятора, окруженные органическим материалом, могут обеспечивать хорошее разделение нейтронного и γ -распределения по амплитуде импульса, при этом детектор имеет более высокую скорость счета, чем детекторы на основе ^3He . Потребность в нейтронных детекторах с низкой чувствительностью к γ -квантам обусловила появление ряда работ в области исследований композитных сцинтилляторов [4–10].

Несмотря на концептуальную простоту подхода, реальные характеристики отклика композитного материала могут сильно зависеть от состава органической матрицы, размера зерен сцинтиллятора и расстояний между ними, а также от оптических свойств различных компонентов. Поэтому с помощью моделирования необходимо изучить и ограничить область допустимых параметров гетерогенного сцинтиллятора и определить возможные конфигурации композита. При оптимальной конфигурации пробеги продуктов захвата нейтрона должны укладываться в отдельном фрагменте сцинтиллятора, а расстояние между стеклянными зернами в композите и их концентрация должны обеспечить высокую эффективность регистрации нейтронов и низкую чувствительность к γ -квантам. Показатели преломления органического и неорганического материалов должны быть близки, чтобы обеспечить минимальное количество отражений, возникающих из-за различия показателя преломления.

В выполненных ранее работах [6, 11, 12] оптимизация композитных сцинтилляторов проводилась для детекторов, используемых для контроля за перемещением делящихся материалов. При этом предполагалось облучение детектора быстрыми нейтронами. В настоящей работе композит, состоящий из фрагментов литиевого стекла, фиксированных в органической матрице, исследуется как детектор тепловых нейтронов. В качестве матричного материала рассматриваются различные органические полимеры. В статье представлено исследование методом Монте-Карло характеристик отклика композитного сцинтиллятора в зависимости от величин зерен сцинтил-

лятора и их концентрации в смеси с различными органическими полимерами при облучении тепловыми нейтронами и γ -квантами.

ОПИСАНИЕ МОДЕЛИ КОМПОЗИТА

Композитный сцинтиллятор имел форму диска $\varnothing 40 \times 2$ мм и представлял собой нейтральную матрицу с размещенными в ней случайным образом зернами сцинтиллятора. В расчетах, выполненных для гомогенного стеклянного сцинтиллятора, размеры последнего были равны размерам композита. В качестве сцинтиллятора использовалось литиевое стекло марки NE 912 (Nuclear Enterprises). Зерна сцинтиллятора имели кубическую форму, размеры ребра куба варьировались от 200 до 800 мкм. Предполагалось, что тепловые нейтроны падают нормально на торец сцинтиллятора и имеют энергетическое распределение, соответствующее распределению Максвелла–Больцмана с температурой 25 мэВ. При исследованиях γ -чувствительности точечный источник ^{60}Co располагался по оси диска на расстоянии 16 мм от торца сцинтиллятора. Прохождение сцинтилляционных фотонов и реакция фотоприемника в работе не рассматривались, регистрировалась только величина переданной энергии в материале сцинтиллятора.

В качестве материала матрицы можно рассматривать различные органические полимеры с показателем преломления, близким к литиевому стеклу. В нашем случае расчеты были сделаны для силиконового компаунда, эпоксидной смолы и акрила. При моделировании композита использовались характеристики материалов, перечисленные в табл. 1.

Для расчетов спектров энергии, переданной сцинтиллятору при экспозиции тепловыми нейтронами и γ -квантами, была разработана компьютерная программа моделирования методом Монте-Карло. В программе использовались Geant4 version 10.06.p01 [13] и ряд стандартных пакетов физических процессов: пакет электромагнитных процессов G4EmStandardPhysics_option4 и пакет неупругих процессов (в том числе для нейтронов до 20 МэВ (Low Energy Nuclear Data)) G4HadronPhysicsQGSP_BERT_HP.

ЭФФЕКТИВНОСТЬ КОМПОЗИТА К НЕЙТРОНАМ

При облучении композита тепловыми нейтронами энерговыделение во фрагментах сцинтиллятора зависит от их размера и концентрации. Форма спектра энерговыделения при взаимодействии с нейтронами была рассчитана для гомогенного стеклянного сцинтиллятора и композита с зернами стекла размером 400 мкм и концентрацией 35%. Результаты моделирования показаны

Таблица 1. Характеристики материалов, использованных при изготовлении композита

Вещество	Атомный состав	Плотность, г/см ³
Силиконовый компаунд	C_2H_6SiO	1.02
Акрил	$C_5H_8O_2$	1.16
Эпоксидная смола	$C_{39}H_{52}O_7$	1.2
Литиевое стекло (NE912)	$SiO_2(74.7\%) + LiO_2(20.7\%) + Ce_2O_3(4.6\%)$ Содержание металлического лития 7.7%, обогащение 6Li 95%	2.4

на рис. 1. В правой части графика можно видеть пик с энергией 4.8 МэВ, соответствующей суммарной энергии продуктов реакции захвата нейтрона ядром 6Li . В области, ограниченной с одной стороны пиком полного поглощения, а с другой — энергией 2.05 МэВ, пробег одной из заряженных частиц выходит за пределы сцинтиллятора. Левая граница области определяется энергией α -частицы и соответствует ситуации, когда захват нейтрона происходит на поверхности раздела и пробег тритона полностью лежит в объеме нейтральной матрицы.

При расчете эффективности нейтрон считался зарегистрированным, если пробеги вторичных частиц укладывались полностью в зерне сцинтиллятора. Такой подход обеспечивал достоверную оценку снизу эффективности композита к нейтронам и позволял значительно экономить время, затрачиваемое на моделирование. Эффективность регистрации определялась как отношение числа зарегистрированных нейтронов к полному числу нейтронов, пересекавших объем композита. Концентрация стеклянного сцинтиллятора определялась как объемная доля стекла в полном

объеме композита и изменялась в расчетах от 20 до 35%. Результат вычислений показан на рис. 2.

Согласно рис. 2, эффективность регистрации сначала растет при увеличении фрагментов стеклянного сцинтиллятора, достигает максимального значения в области размеров зерен от 400 до 500 мкм и плавно спадает при их дальнейшем увеличении. Уменьшение эффективности в области малых размеров зерен связано с увеличением числа событий, при которых продукты реакции захвата нейтрона пересекают границы стеклянных фрагментов. При увеличении размеров зерен выше оптимального значения при фиксированной концентрации стекла растет площадь зон, где отсутствует стекло и нейтрон пролетает сквозь композит, не пересекая ни одного фрагмента сцинтиллятора. Наличие выраженного “плато” на зависимостях эффективности в области разме-

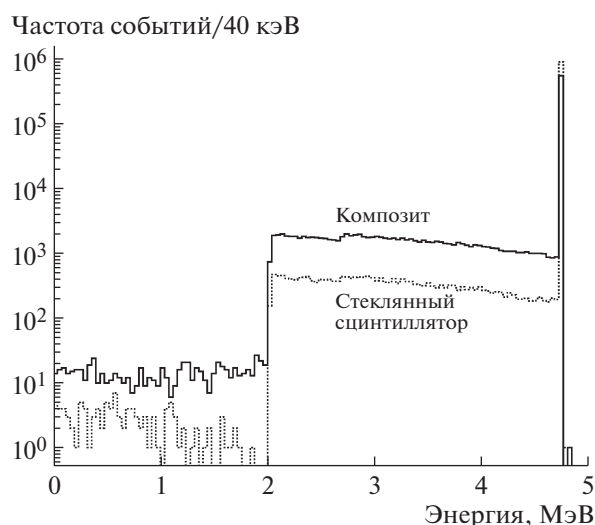


Рис. 1. Спектры энергосодержания нейтронов в стеклянном сцинтилляторе и композите с зернами стекла размером 400 мкм и концентрацией 35%.

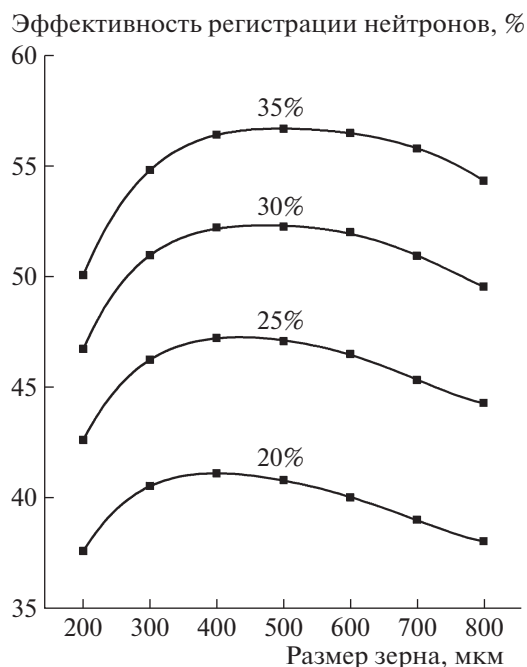


Рис. 2. Зависимости эффективности регистрации нейтронов от размера зерен стеклянного сцинтиллятора при различных уровнях его концентрации (цифры у кривых).

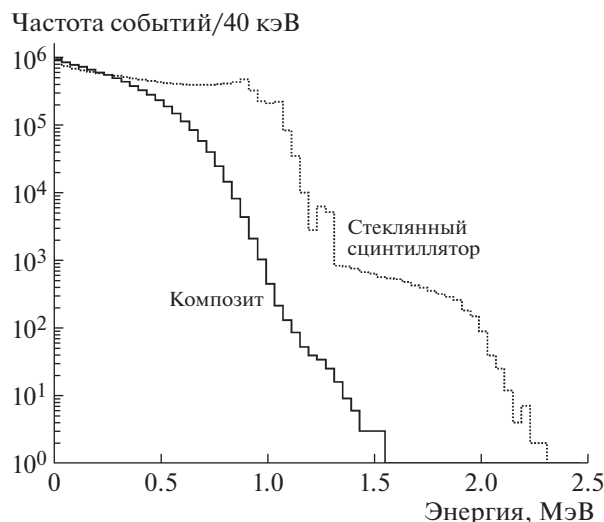


Рис. 3. Сравнение спектров энергосодержания γ -квантов от источника ^{60}Co в стеклянном сцинтилляторе и композите с зернами стекла размером 400 мкм и концентрацией 35%.

ра зерна 400–500 мкм позволяет использовать для изготовления порошка стеклянного сцинтиллятора простейший метод помола с последующей сортировкой на ситах.

ГАММА-ЧУВСТВИТЕЛЬНОСТЬ КОМПОЗИТА

В данной работе γ -чувствительность была определена как отношение числа γ -квантов, выделившихся в сцинтилляторе энергию, превышающую установленный порог регистрации, к общему числу γ -квантов, пересекших чувствительный объем детектора. Для иллюстрации возможностей композитного сцинтиллятора по подавлению γ -чувствительности детектора был проделан расчет спектров энергосодержания от γ -квантов источника ^{60}Co в гомогенном и композитном сцинтилляторах с одинаковыми размерами. Расчеты проводились для композитного сцинтиллятора с концентрацией стекла 35% и размером зерен 400 мкм. Результаты вычислений показаны на рис. 3.

Согласно рис. 3, спектр от γ -квантов заметно смещается в область низких энергий. Число событий, превышающих электронный эквивалент энергии, выделяющейся при захвате нейтрона ($T_{ee} = 1.53$ МэВ), для стекла примерно на 2 порядка выше, чем для композита.

Экспериментальные спектры энергии при регистрации нейтронов хорошо описываются нормальным распределением с математическим ожиданием T_{ee} и стандартным отклонением σ . Порог при регистрации нейтронов устанавливается на уровне $L = T_{ee} - k\sigma$, где коэффициент k в зависи-

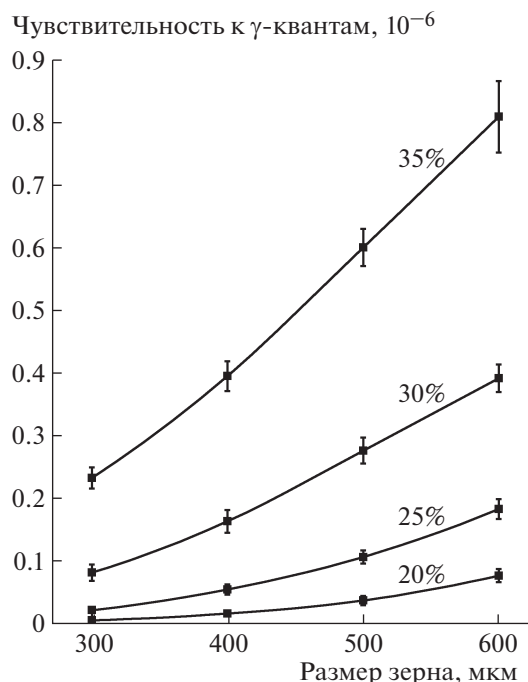


Рис. 4. Зависимости чувствительности к γ -квантам композитного сцинтиллятора $\varnothing 40 \times 2$ мм от размера зерен стекла при различной его объемной концентрации (цифры у кривых).

мости от конкретных условий эксперимента может лежать в пределах $2 \leq k \leq 4$. Стандартное отклонение для конкретного детектора, созданного на основе композита, зависит от ряда условий: оптических характеристик компонентов, параметров фотодетектора, способов обработки сигнала и пр. В нашем случае в процессе моделирования реакции композита на γ -кванты условный порог регистрации устанавливался на уровне $R = 0.8T_{ee} = 1.22$ МэВ. Результаты расчетов γ -чувствительности композита в зависимости от размеров стеклянных зерен для различных значений концентрации стекла показаны на рис. 4.

Для выбора концентрации стекла в композите в соответствии с экспериментальными условиями (уровень и энергетическое распределение γ -фона, требования к эффективности регистрации нейтронов и пр.) можно использовать рис. 5. На этом рисунке приведены зависимости эффективности регистрации нейтронов и γ -чувствительности для композита с зернами размером 400 мкм при различных концентрациях стекла. Можно видеть, что увеличение концентрации стекла в композите приводит к быстрому росту γ -чувствительности. Поэтому исследование свойств композита при концентрациях стекла, превышающих 35%, было признано нецелесообразным. Выбирая рабочий состав композита, можно получить сцинтиллятор, соответствующий различным тре-

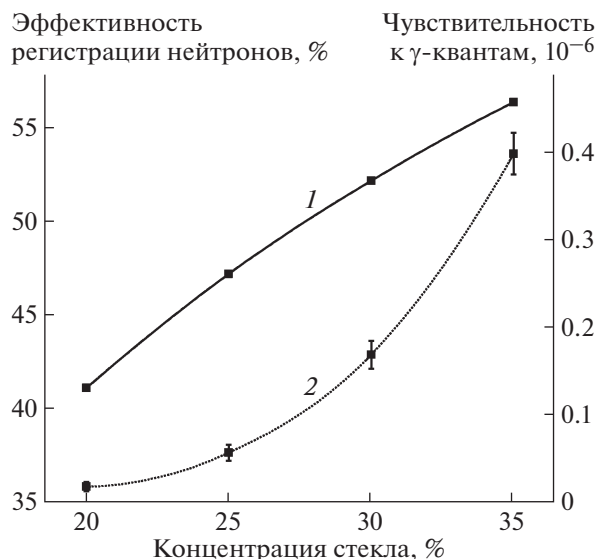


Рис. 5. Эффективность регистрации тепловых нейтронов (1) и γ -чувствительность (2) композитного сцинтиллятора с зернами стекла размером 400 мкм в зависимости от концентрации стекла.

бованиям для работы в смешанных полях нейтронного и γ -излучения. Чтобы иметь возможность учитывать энергетическое разрешение детекторов при выборе концентрации стекла, мы рассчитали зависимость γ -чувствительности для композита с зернами размером 400 мкм от порога регистрации в процентах от T_{ee} . Результат расчета показан на рис. 6.

Основная функция, выполняемая материалом матрицы гетерогенного сцинтиллятора, — это поглощение энергии, выделяемой γ -квантами в объеме композита. Поэтому представляет интерес сравнение композитов с матрицами из различных органических соединений, обладающих близкими оптическими свойствами. Результаты расчетов для различных составов композита в сравнении с гомогенным стеклянным сцинтиллятором аналогичной геометрии представлены в табл. 2.

Анализ приведенных в таблице данных позволяет сделать вывод, что в энергетическом приближении выбор материала матрицы из рассмот-

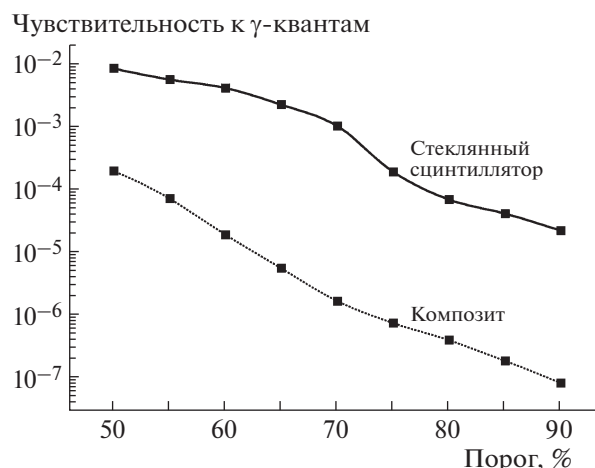


Рис. 6. Зависимости γ -чувствительности от уровня порога регистрации для стеклянного сцинтиллятора и композита с зернами размером 400 мкм и их концентрацией 35%.

ренного набора соединений незначительно влияет на качество композита, а определять свойства детектора будут оптические характеристики материала. Окончательный выбор состава возможен после проведения экспериментальных исследований композитов, построенных на основе различных органических соединений.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Проведено моделирование и оптимизация композитного сцинтиллятора, предназначенного для регистрации тепловых нейтронов и обеспечивающего низкую чувствительность к γ -квантам. Рассмотренная модель композита состоит из кубических фрагментов литиевого стекла, размещенных в нейтральной органической матрице. Характеристики композита при различных размерах фрагментов и концентрациях литиевого стекла определялись с помощью моделирования в среде Geant4. Определенная в расчетах оптимальная конфигурация композита достигается при объемной концентрации стекла на уровне 35% и размере зерен в интервале 400–500 мкм. По сравнению с гомогенным стеклянным сцинтиллятором аналогичных размеров эффективность

Таблица 2. Характеристики композитов с матрицами из различных материалов в сравнении со стеклянным сцинтиллятором

Материал	Эффективность к нейтронам, %	Гамма-чувствительность
Силиконовый компаунд	56	$6 \cdot 10^{-7}$
Акрил	56	$4 \cdot 10^{-7}$
Эпоксидная смола	56	$4 \cdot 10^{-7}$
Стеклянный сцинтиллятор	91	$7 \cdot 10^{-5}$

регистрации нейтронов таким композитом падает от 91 до 56%, а чувствительность к γ -квантам может быть снижена на два порядка, до $4 \cdot 10^{-7}$. Рассмотрены различные материалы для использования в качестве нейтральной матрицы композита: акрил, эпоксидная смола и силиконовый компаунд. Установлено, что в энергетическом приближении как эффективность регистрации нейтронов, так и γ -чувствительность композита практически не зависят от того, какое из рассмотренных веществ было использовано в качестве материала матрицы. По результатам этой работы будут построены опытные образцы различных конфигураций для экспериментальной проверки.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Кузьмин Е.С., Бокучава Г.Д., Зимин И.Ю., Круглов А.А., Кучинский Н.А., Малышев В.Л. // ПТЭ. 2021. № 2. С. 25.
<https://doi.org/10.31857/S0032816221010316>
2. Favalli A., Iliev M.L., Chung K., Hurlbut C., Martinez H.P., Swinhoe M.T., Zaitseva N.P., Ianakiev K.D. // IEEE Trans. Nucl. Sci. 2013. 60 P. 1053.
<https://doi.org/10.1109/TNS.2013.2251900>
3. Ziegler J.F., Ziegler M., Biersack J. // Nucl. Instrum. and Methods in Phys. Res. 2010. V. B268. P. 1818.
<https://doi.org/10.1016/j.nimb.2010.02.091>
4. Ianakiev K.D., Hehlen M.P., Swinhoe M.T., Favalli A., Iliev M.L., Lin T.C., Bennett B.L., Barker M.T. // Nucl. Instrum. and Methods in Phys. Res. 2015. V. A784. P. 189.
<https://doi.org/10.1016/j.nima.2014.10.073>
5. Rich G.C., Kazkaz K., Martinez H.P., Gushue T. // Nucl. Instrum. and Methods in Phys. Res. 2015. V. A794. P. 15.
<https://doi.org/10.1016/j.nima.2015.05.004>
6. Mayer M.F., Nattress J., Trivelpiece C., Jovanovic I. // Nucl. Instrum. and Methods in Phys. Res. 2015. V. A784. P. 168.
<https://doi.org/10.1016/j.nima.2014.09.023>
7. Kazkaz K., Bowden N.S., Pedretti M. // IEEE Trans. Nucl. Sci. 2013. V. 60. № 2. P. 1416.
<https://doi.org/10.1109/TNS.2013.2249528>
8. Shi T., Nattress J., Mayer M., Lin M.W., Jovanovic I. // Nucl. Instrum. and Methods in Phys. Res. 2016. V. A839. P. 86.
<https://doi.org/10.1016/j.nima.2016.09.041>
9. Mayer M., Nattress J., Kukharev V., Foster A., Meddeb A., Trivelpiece C., Ounaies Z., Jovanovic I. // Nucl. Instrum. and Methods in Phys. Res. 2015. V. A785. P. 117.
<https://doi.org/10.1016/j.nima.2015.03.014>
10. Chernukhin Y.I., Yudov A.A., Streltsov S.I. // Nucl. Energy Technol. 2015. V. 1. P. 130.
<https://doi.org/10.1016/j.nucet.2016.01.005>
11. Foster A., Meddeb A., Wilhelm K., Nattress J., Ounaies Z., Jovanovic I. // Nucl. Instrum. and Methods in Phys. Res. 2018. V. A905. P. 29.
<https://doi.org/10.1016/J.NIMA.2018.07.018>
12. Wiggins B.W., Favalli A., Iliev M.L., Ianakiev K.D., Hehlen M.P. // Nucl. Instrum. and Methods in Phys. Res. 2019. V. A915. P. 17.
<https://doi.org/10.1016/j.nima.2018.10.165>
13. Geant4. A Simulation Toolkit.
<https://geant4.web.cern.ch/support/download>