

УДК 539.1.074

ИСПОЛЬЗОВАНИЕ АКТИВНОГО НЕЙТРОННОГО СЧЕТЧИКА СОВПАДЕНИЙ В ЗАДАЧАХ РАЗРАБОТКИ ПОЛУПРОВОДНИКОВЫХ ДЕТЕКТОРОВ НЕЙТРОННОГО ПОТОКА

**Д.В. Кутний, В.Е. Кутний, Н.П. Одейчук, В.Е. Товканец,
 А.В. Рыбка, А.А. Захарченко**

Національний науковий центр «Харківський фізико-технічний інститут», 61108, г. Харків, ул. Академіческа, 1

E-mail: d_kutniy@kipt.kharkov.ua

Поступила в редакцию 23 июня 2008 г.

В работе рассмотрены особенности регистрации нейтронов радиоизотопного источника $^{241}\text{AmLi}$ с помощью полупроводникового детектора гамма-излучения на основе германия высокой чистоты и конвертера нейтронов в гамма-кванты на основе Cd. Проведено измерение гамма-фона $^{241}\text{AmLi}$ -источника нейтронов в области энергий 200...800 кэВ, идентифицированы основные гамма-линии с интенсивностью $\geq 2 \times 10^{-6} \%$. Подтверждено возникновение мгновенных гамма-квантов с энергиями 558,6 и 651,3 кэВ в результате взаимодействия нейтронов с Cd-конвертером. Оценена эффективность регистрации нейтронов коаксиальным германиевым детектором $\varnothing 50,5 \times 42,5$ мм.

КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА: нейtron, детектор, гамма-излучение, $^{241}\text{AmLi}$, конвертер, Cd, ядерный реактор, эффективность регистрации

Детекторы нейтронов применяются в дозиметрической и радиометрической аппаратуре для контроля режимов работы ядерных реакторов при выходе на мощность и при работе на номинальной мощности, в системах защиты и управления, контроля распределения мощности в активной зоне ядерного реактора, для контроля состава теплоносителя и герметичности оболочек ТВЭлов и т.д. [1]. В системах управления и контроля безопасности ядерных реакторов АЭС Украины используются ионизационные камеры и газоразрядные детекторы, поставляемые из-за рубежа (газонаполненные камеры деления типа КНТ, счетчики нейтронов с конвертером на основе ^3He типа СНМ-18, счетчики с твердым борным конвертером типа СНМ-12). Эти устройства разработаны в 60-х годах и к настоящему времени их характеристики уже не соответствуют современным требованиям, предъявляемым к безопасности АЭС. Недавно для применения в аппаратуре контроля нейтронного потока (АКНП) на АЭС Украины прошли аттестацию ионизационные камеры деления типа КНК производства ЗАО «СНИИП-СИСТЕМАТОМ» (Российская Федерация) и типа CFUL08/F16 производства предприятия PHOTONIS S.A.S. (Франция) [2].

В последние годы значительно усилился интерес к детекторам нейтронов на основе полупроводников с твердотельными конверторами. Это вызвано необходимостью разработки приборов радиационного контроля с большими сроками эксплуатации, высокой точностью измерения характеристик нейтронных потоков и для обнаружения делящихся материалов для предотвращения их незаконного перемещения [3]. В связи с получением новых типов полупроводников (легированный кислородом радиационностойкий Si, алмаз природный и полученный методом CVD, SiC и т.д. [4–6]) перспективным становится направление создания на их основе нейтронных детекторов с использованием таких конвертеров, как традиционные – ^6Li , ^{10}B , ^{235}U , так и таких, как источники конверсионных электронов – ^{155}Gd , ^{157}Gd [7]. Твердотельные полупроводниковые детекторы для регистрации нейтронов обладают рядом преимуществ, вследствие удовлетворительной эффективности регистрации и малых размеров. Кроме того, часто только они могут использоваться в некоторых применениях (управление пучками, пространственные наблюдения, будущие ускорители частиц и т.д.).

ПОСТАНОВКА ЗАДАЧИ

Регистрации нейтронов в основном базируется на детектировании продуктов реакции, возникающих при взаимодействии тепловых нейтронов с различными материалами. Продуктами реакции могут быть: заряженные частицы (например, в реакциях $^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}$ и $^3\text{He}(n, p)^3\text{H}$); конверсионные электроны ($^{157}\text{Gd}(n, \gamma e^-)^{158}\text{Gd}$); мгновенные гамма-кванты ($^{113}\text{Cd}(n, \gamma)^{114}\text{Cd}$) [8]. Для регистрации тепловых нейтронов широко используются газоразрядные детекторы, в которых, в качестве конвертеров, применяются ^{10}B , $^{10}\text{BF}_3$ и ^3He . Газоразрядные детекторы обладают серьезными преимуществами, вследствие достаточно большого объема детектора, обеспечивающего хорошую эффективность взаимодействия тепловых нейтронов с его материалом. На отечественных ядерных реакторах данный тип детекторов используется, в основном, для контроля концентрации бора в теплоносителе реактора типа ВВЭР и контроля герметичности оболочек ТВЭлов.

Возникновение ядерных реакций в различных материалах с испусканием гамма-квантов или заряженных частиц наиболее вероятно под действием тепловых нейтронов. Таким образом, для регистрации медленных нейтронов используются ядерные реакции расщепления легких ядер под действием нейтронов (^3H , ^3He , ^6Li , ^7Li , ^{10}B) с регистрацией α -частиц и протонов; реакции деления тяжелых ядер с регистрацией осколков деления; радиационный захват нейтронов ядрами с регистрацией гамма-квантов, а также возбуждение искусственной радиоактивности.

При разработке детекторов нейтронного потока одной из основных проблем, с которыми сталкиваются разработчики, является тестирование и калибровка полученных устройств. Для решения этой проблемы, прежде всего, необходимо осуществить выбор соответствующего источника нейтронов. В лабораторной практике, с целью проверки работоспособности приборов, предназначенных для анализа ядерных материалов, используются компактные переносные нейтронные источники. Такие источники могут быть изготовлены с использованием изотопов, излучающих нейтроны в результате спонтанного деления или реакции (α , n) между мощными альфа-излучающими изотопами и веществами, состоящими из элементов с низким атомным номером (Li, Be, B, F).

Калифорний-252 является широко используемым источником нейтронов спонтанного деления, он может иметь сравнительно малые размеры и оставаться мощным излучателем в течение длительного времени. В некоторых практических случаях важно помнить, что нейтроны ^{252}Cf испускаются со средней множественностью, равной 3,757, поэтому они сильно коррелированы во времени и будут генерировать события совпадений. Источники, излучающие случайные, некоррелированные нейтроны, могут быть изготовлены путем смешивания таких альфа-излучателей, как ^{238}Pu или ^{241}Am с Be, Li, F или другими элементами, с которыми возможны реакции (α , n). В табл. 1 обобщены характеристики наиболее распространенных источников нейтронов на основе реакции (α , n) [9].

Табл. 1. Характеристики некоторых изотопных источников нейтронов на основе реакции (α , n)

Источник	Период полураспада, лет	Средняя энергия α -частиц, МэВ	Средняя энергия нейтронов, МэВ	Максимальная энергия нейтронов, МэВ
$^{210}\text{PoBe}$	0,38	5,3	4,2	10,9
$^{238}\text{PuBe}$	87,74	5,49	4,5	11,0
$^{239}\text{PuBe}$	24120	5,15	4,5	10,7
$^{241}\text{AmBe}$	433,6	5,48	5,0	11,0
$^{241}\text{AmLi}$	433,6	5,48	0,3	1,5
^{241}AmB	433,6	5,48	2,8	5,0

В настоящее время чаще других используются нейтронные источники $^{241}\text{AmBe}$ и $^{241}\text{AmLi}$. Энергетические спектры таких источников приведены на рис. 1, 2 [9]. Отметим, что спектры нейтронов могут незначительно изменять свою форму в зависимости от конструкции источника и его состава. Источник AmLi обычно изготавливается путем смешивания $^{241}\text{AmO}_2$ с оксидом лития, вследствие чего реакции (α , n) на кислороде дают вклад в спектр в виде высокоэнергетического «хвоста» (см. рис. 1).

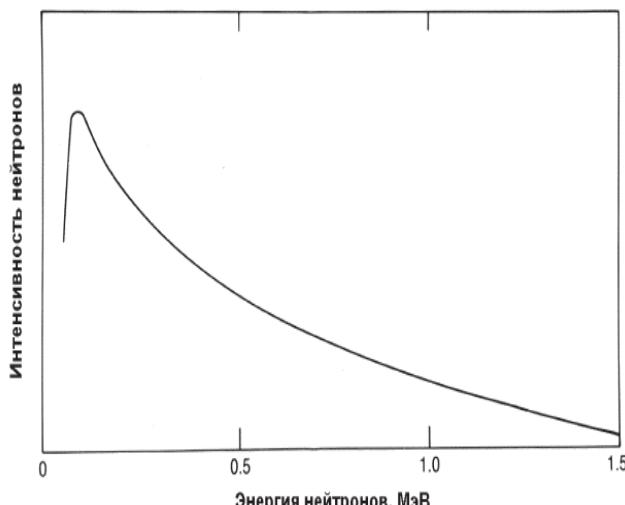


Рис. 1. Энергетический спектр нейтронов источника AmLi [9]

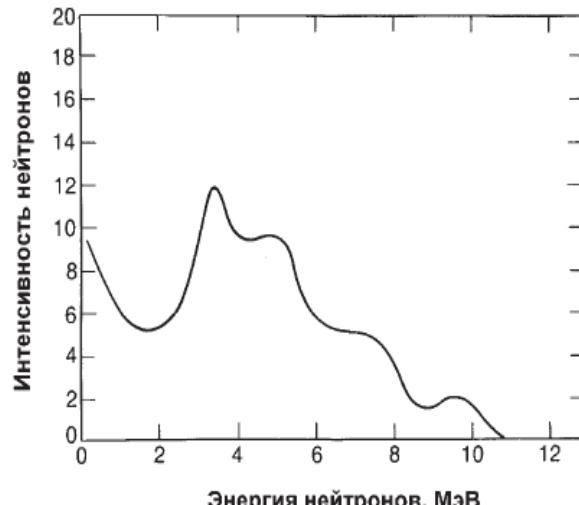


Рис. 2. Энергетический спектр нейтронов источника AmBe [9]

Источники нейтронов $^{241}\text{AmBe}$ компактны и не нуждаются в громоздкой защите от вторичного гамма-излучения. Источники $^{241}\text{AmLi}$ менее компактны, требуют вольфрамовой защиты от интенсивного гамма-излучения, но из-за своего низкоэнергетического нейтронного спектра находят широкое применение в качестве контрольных источников случайных нейтронов.

Целью данной работы стало исследование особенностей регистрации нейтронов изотопного источника $^{241}\text{AmLi}$ ($\bar{E}_n \sim 300$ кэВ) с помощью полупроводникового детектора гамма-излучения на основе ОЧГ германия.

МЕТОДИКА ЭКСПЕРИМЕНТА

Активный счетчик нейтронных совпадений колодезного типа (AWCC – Active Well Coincidence Counter) модели JCC-51 (см. рис. 3) предназначен для определения массы ^{235}U в различных высокообогащенных урановых материалах (металлический уран, его соединения, порошки оксидов урана, скрап, отходы) [10]. Уран, по сравнению с плутонием, испускает значительно меньшее количество нейтронов спонтанного деления, поэтому для его анализа применяют нейтроны вынужденного деления от двух внешних источников $^{241}\text{AmLi}$.

В качестве детекторов в счетчике используется 42 газовые трубы $\varnothing 25,4 \times 508$ мм, заполненные ^3He до давления 4 атм. Кроме того, в качестве добавки к ^3He вводится 5 % CO_2 , что позволяет снизить чувствительность детекторов к гамма-излучению. Трубы расположены в два слоя и обеспечивают эффективность регистрации 26 % для образцов малого размера. Размеры измерительной камеры могут изменяться от $\varnothing 229 \times 206$ мм до $\varnothing 229 \times 351$ мм. Счетчик может работать как в режиме регистрации тепловых нейтронов (UO_2 , U_3O_8 с малым обогащением, отходы с содержанием $^{235}\text{U} < 50$ г, уран-ториевые композиции и материалы с большим содержанием водорода), так и в режиме регистрации быстрых нейтронов (металлический U с высоким обогащением). Кроме того, со снятыми источниками нейтронов (в пассивном режиме) счетчик может работать и для анализа плутониевых образцов.

Конструктивно в активном нейтронном счетчике совпадений два $^{241}\text{AmLi}$ -источника нейтронов расположены в верхней и нижней торцевых заглушках (см. рис. 4). Для снижения гамма-фона источника используется вольфрамовый стенок W-контейнера: от 3 мм (боковые стенки) до 0,81 мм для уменьшения влияния фона тепловых нейтронов. Таким образом, при установленном кадмиевом экране источник работает в режиме быстрых нейтронов и в этом случае нейтронный спектр характеризуется достаточно высокой энергией. При удалении кадмиевого экрана спектр облучающих нейтронов будет иметь сравнительно низкую энергию, и режим работы источника становится тепловым. Образование нейтронов в источнике $^{241}\text{AmLi}$ происходит следующим образом. ^{241}Am излучает α -частицы с энергией $\sim 5,5$ МэВ и далее в результате реакции $\alpha + ^7\text{Li} \rightarrow ^{10}\text{B} + n$ испускаются нейтроны в интервале энергий 0...1,6 МэВ и интенсивностью потока $4,5 \times 10^5$ н/с.

Для проведения гамма-спектрометрических измерений использовался коаксиальный детектор на

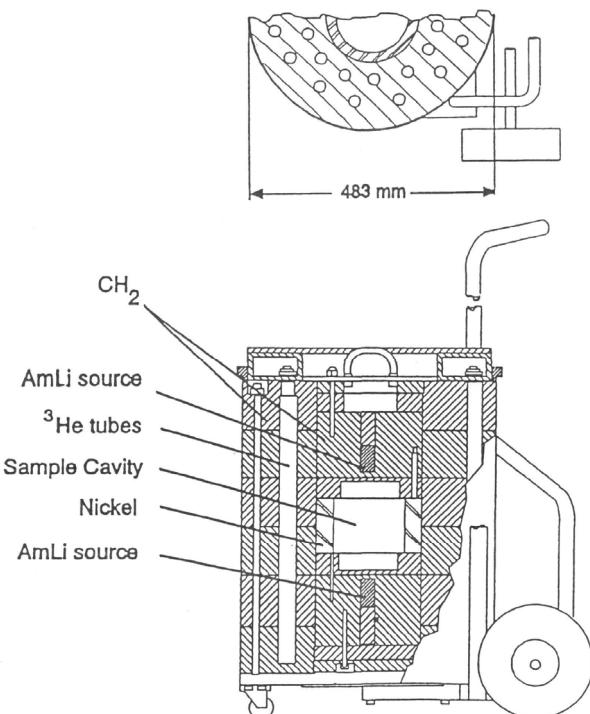


Рис. 3. Активный нейтронный счетчик совпадений.

контейнер. Размеры источника $\varnothing 26 \times 44$ мм, толщина 10 мм на торцах. Для замедления нейтронов контейнер с источником размещен внутри полиэтиленовых (CH_2) дисков $\varnothing 220$ мм и общей высотой 203 мм. Диски выполнены съемными, так что измерительная полость может меняться по высоте от 206 мм до 351 мм. В нижней части торцевой заглушки установлен Cd-экран толщиной

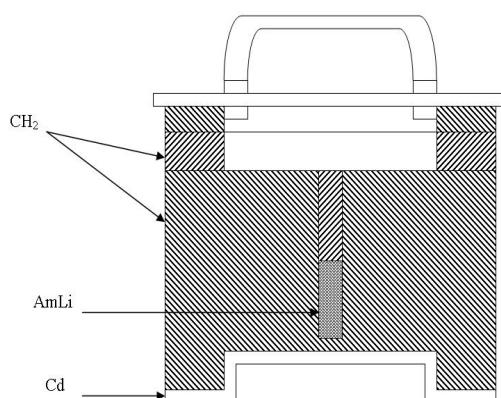


Рис. 4. Схематическое изображение конструкции торцевой заглушки AWCC с AmLi-источником нейтронов.

основе ОЧГ Ge $\varnothing 50,5 \times 42,5$ мм³, относительная эффективность регистрации гамма-излучения $> 18\%$, энергетическое разрешение для энергии 1332 кэВ составляет 1,8 кэВ, а для энергии 122 кэВ – 0,75 кэВ, диапазон регистрируемых энергий гамма-квантов – от 50 кэВ до 10 МэВ.

Для цифровой обработки сигнала использовался многоканальный анализатор DSA-1000 (Canberra) с цифровым сигнальным процессором и программным управлением. В состав анализатора входят цифровой сигнальный процессор на 16 К каналов, стабилизатор спектра, универсальный источник высокого напряжения и память на 16 К каналов спектра. В данной модели анализатора используется цифровая обработка сигнала, в которой входной импульс оцифровывается сразу после некоторой предварительной обработки, и все дальнейшие операции осуществляются уже над цифровым кодом. В таком виде обработки практически исключается погрешность, обусловленная нестабильностью аналоговых схем, а также появляется возможность обеспечить фильтрацию, недостижимую с помощью аналоговой схемотехники.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Известно, что большинство радиоизотопных источников нейтронов обладает достаточно высоким гаммафоном, который вносит серьезные погрешности в измерения нейтронного потока твердотельными детекторами гамма-излучения [11]. На рис. 5 приведен амплитудный спектр гамма-излучения нейтронного источника ²⁴¹AmLi, полученный с помощью коаксиального детектора на основе ОЧГ Ge.

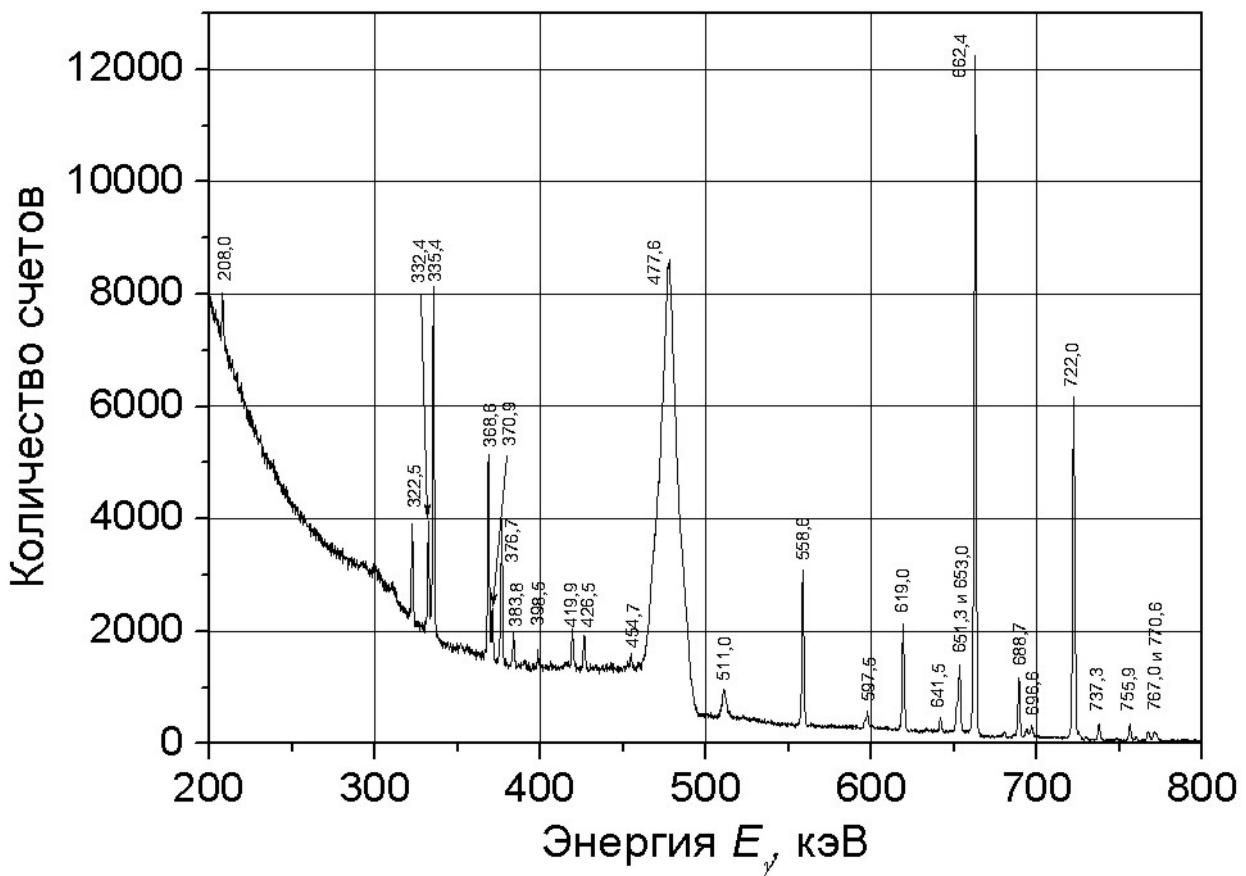


Рис. 5. Амплитудный спектр гамма-излучения нейтронного источника ²⁴¹AmLi в области энергий 200...800 кэВ

Отметим, что в работе [11] исследовался гамма-фон некоторых радиоизотопных источников нейтронов и, в частности ²⁴¹AmLi в области энергий 0...500 кэВ и 1...5 МэВ, однако область энергий 500 кэВ...1 МэВ не изучалась.

Наличие гамма-излучений в нейтронном источнике ²⁴¹AmLi в области энергий до 1 МэВ, в основном, обусловлено присутствием радионуклида ²⁴¹Am. При обработке результатов измерений были идентифицированы все гамма-линии ²⁴¹Am с интенсивностью $\geq 2 \times 10^{-6}\%$. В области энергий 300...500 кэВ, в отличие от данных работы [11] достаточно четко зафиксированы пики 370,9; 383,8; 398,5; 419,9; 426,5; 454,7 кэВ. Отметим, что выше 800 кэВ и до 921,5 кэВ радионуклид ²⁴¹Am излучает еще 9 гамма-линий, но их интенсивность ниже $2 \times 10^{-6}\%$.

Все гамма-линии, приведенные на рис. 5 являются линиями радионуклида ^{241}Am за исключением четырех, а именно, 477,6; 511,0; 558,6 и 651,3 кэВ. Пик 477,6 кэВ характерен именно для нейтронного источника $^{241}\text{AmLi}$ и возникает в результате реакции $^7\text{Li}(\alpha, \gamma) ^7\text{Li}^*$. Пик 511,0 кэВ является пиком аннигиляционного излучения позитронов, возникающим при двухфотонной аннигиляции [12].

Происхождение пиков 558,6 и 651,3 кэВ объясняется наличием в конструкции торцевой заглушки счетчика совпадений Cd-экрана толщиной 0,81 мм, предназначенного для уменьшения влияния фона тепловых нейтронов. В результате реакции $^{113}\text{Cd}(n, \gamma) ^{114}\text{Cd}$ возникают мгновенные гамма-кванты с двумя характерными энергиями 558,6 и 651,3 кэВ, которые и регистрируются Ge-детектором.

Для подтверждения данного предположения была проведена следующая серия экспериментов. В первом эксперименте для снижения гамма-фона $^{241}\text{AmLi}$ -источника между детектором и источником был установлен Pb-экран толщиной 50 мм, результаты измерений приведены на рис. 6.

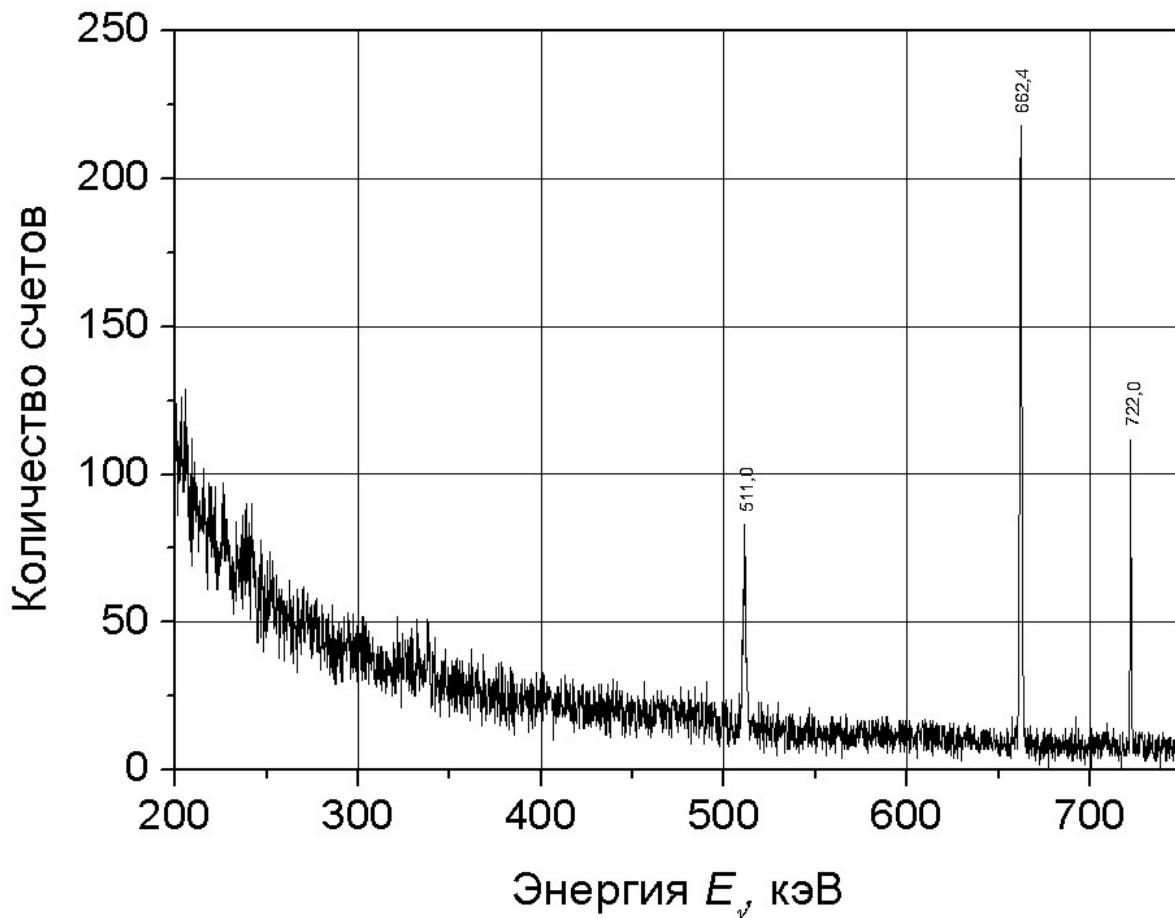


Рис. 6. Амплитудный спектр гамма-излучений нейтронного источника $^{241}\text{AmLi}$, полученный с помощью Ge-детектора, экранированного 50 мм свинца

Очевидно, что 50 мм свинца оказывается достаточным для практически полной нейтрализации гамма-фона $^{241}\text{AmLi}$ -источника в области энергий 200...800 кэВ за исключением линий 511,0; 662,4; 722,0 кэВ. Как уже упоминалось ранее, линия 511,0 кэВ является пиком аннигиляционного излучения позитронов. Пики 662,4 и 722,0 кэВ возникают от высокоэнергетических гамма-квантов с достаточно высокой интенсивностью $2...3 \times 10^{-4} \%$, поэтому даже при такой экранировке они идентифицируются детектором, несмотря на то, что скорость счета в пиках падает на 1...2 порядка.

В следующем эксперименте помимо Pb-экрана, на детектор была установлена Cd-пластина $\varnothing 80 \times 0,4 \text{ mm}^3$. Результаты измерений приведены на рис. 7.

Из приведенных на рис. 7 данных видно, что помимо трех линий, присутствующих и на предыдущем спектре, однозначно идентифицируется два пика: 558,6 и 651,3 кэВ. Как было отмечено ранее, эти пики характеризуют реакцию $^{113}\text{Cd}(n, \gamma) ^{114}\text{Cd}$, протекающую в результате облучения кадмевой пластины нейтронами $^{241}\text{AmLi}$ -источника. Таким образом, действительно, образование мгновенных гамма-квантов с энергиами 558,6 и 651,3 кэВ происходит в результате взаимодействия нейтронов с атомами Cd.

Следовательно, используя источник нейтронов на основе $^{241}\text{AmLi}$ и конвертер (в данном случае Cd), возможно регистрировать нейтроны, регистрируя гамма-кванты с энергиями 558,6 и 651,3 кэВ, с помощью твердотельного детектора на основе ОЧГ Ge.

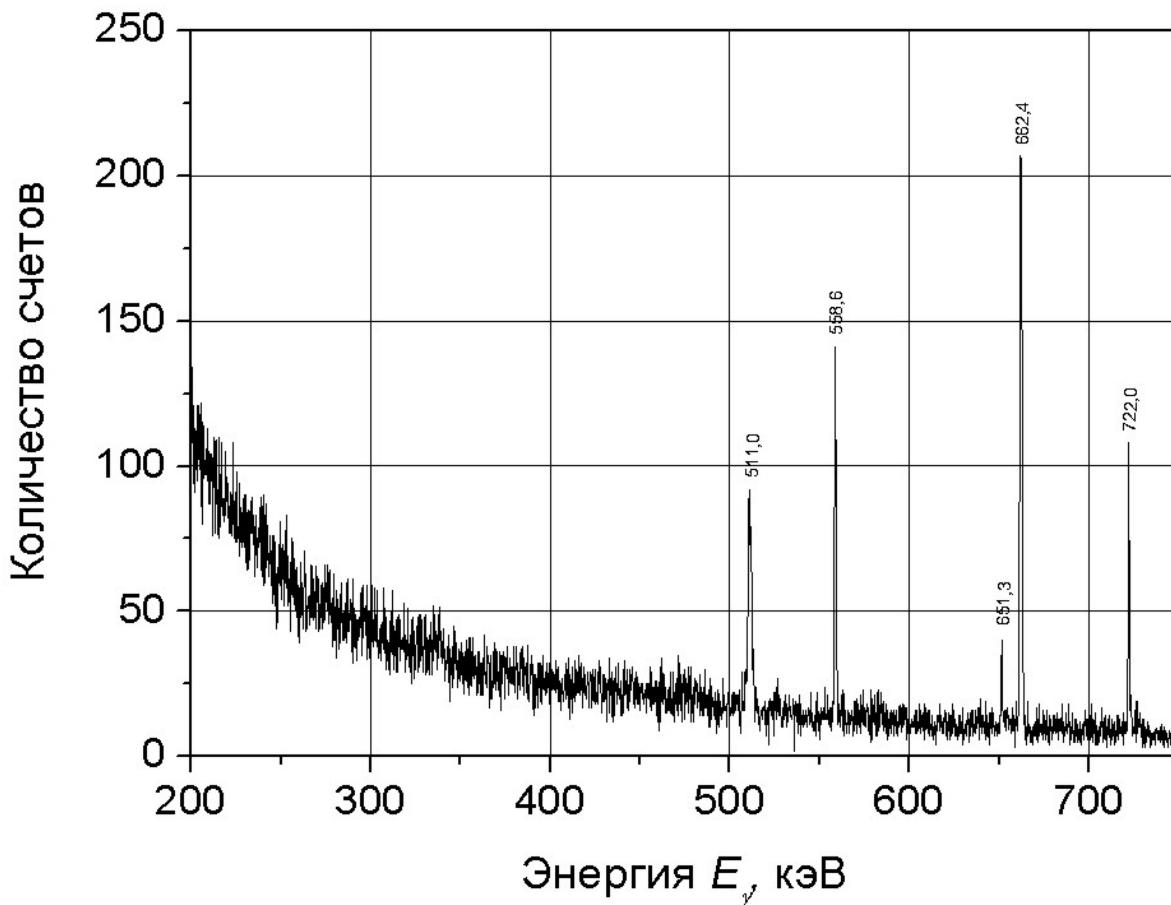


Рис. 7. Амплитудный спектр, полученный при облучении Ge-детектора источником нейтронов $^{241}\text{AmLi}$, детектор скринирован 50 мм свинца и Cd-пластиной $\varnothing 80 \times 0,4$ мм

В заключение можно косвенно оценить эффективности регистрации нейтронов источника $^{241}\text{AmLi}$ спектрометром с полупроводниковым детектором на основе ОЧГ Ge. При выбранной геометрии эксперимента, плотность потока нейтронов в точке расположения детектора составляла $\sim 110 \text{ см}^{-2} \times \text{с}^{-1}$. Измеренная скорость счета событий в пике 558,6 кэВ составила $\sim 0,4$ имп/с. Таким образом, эффективность регистрации детектора гамма-квантов с энергией 558,6 кэВ, возникающих в процессе взаимодействия нейтронов источника $^{241}\text{AmLi}$ с материалом конвертера (Cd), составила $\sim 1,9\%$.

ВЫВОДЫ

В работе изложены результаты экспериментальных исследований особенности регистрации нейтронов радиоизотопного источника $^{241}\text{AmLi}$ с помощью твердотельного полупроводникового детектора гамма-излучения на основе германия высокой чистоты.

Проведено измерение гамма-фона радиоизотопного источника нейтронов $^{241}\text{AmLi}$ в области энергий 200...800 кэВ. В исследуемой области энергий идентифицированы основные гамма-линии радионуклида ^{241}Am с интенсивностью $\geq 2 \times 10^{-6}\%$.

Показано, что при использовании кадмievого экрана, в результате взаимодействия нейтронов с атомами Cd по реакции $^{113}\text{Cd}(n, \gamma)^{114}\text{Cd}$, происходит образование мгновенных гамма-квантов с энергиями 558,6 и 651,3 кэВ.

Показано, что полупроводниковый детектор гамма-излучения на основе германия может быть использован для косвенной регистрации тепловых нейтронов с эффективностью регистрации $\sim 1,9\%$, путем детектирования мгновенных гамма-квантов с энергией 558,6 кэВ.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Knoll G.F. Radiation Detection and Measurement, 3rd ed. – New York: Wiley, 2000. – 802 pp.
2. Державний реєстр засобів вимірювальної техніки № У2184-05.
3. Kouzes R.T., Siciliano E.R., Ely J.H. et al. Passive neutron detection for interdiction of nuclear material at borders // Nucl. Instr. and Meth. A. - 2008. - Vol. 584. - P. 383-400.
4. Ковалчук В.Д., Троцик В.И., Ковалчук В.Д. Алмазный детектор как спектрометр быстрых нейtronов // Приборы и техника эксперимента. – 1995. – № 1. – С. 29–34.
5. Marinelli M., Milani E., Prestopino G. et al. High performance ^{6}LiF -diamond thermal neutron detectors // Appl. Phys. Lett. – 2006. – Vol. 89. – P. 143509-1–3.
6. Manfredotti C., Lo Giudice A., Fasolo F. et al. SiC detectors for neutron monitoring // Nucl. Instr. and Meth. A. – 2005. – Vol. 552. – P. 131–137.
7. Shultz J.K., McGregor D.S. Efficiencies of coated and perforated semiconductor neutron detectors // IEEE Trans. Nucl. Sci. – 2006. – Vol. 53, №. 3. – P. 1659–1665.
8. McGregor D.S., Lindsay J.T., Olsen R.W. Thermal neutron detection with cadmium zinc telluride semiconductor detectors // Nucl. Instr. and Meth. A. – 1996. – Vol. 381. – P. 498–501.
9. Райлли Д., Энслин Н., Смит Х., Крайнер С. Пассивный неразрушающий анализ ядерных материалов. - М.: Бином, 2000. - 703 с.
10. El-Gammal W., Zidan W.I., Elhakim E. A proposed semi-empirical method for ^{235}U mass calibration of the active-well neutron coincidence counter // Nucl. Instr. and Meth. A. – 2006. – Vol. 565. – P. 731–741.
11. Lakosi L., Nguyen C.T., Bagi J. Quantitative NDA of isotopic neutron sources // Applied Radiation and Isotopes. - 2005. – Vol. 63. - P. 681-687.
12. Sardaria D., Baghini N.M. Escape probability of 511 keV annihilation photons from HPGe detectors // Radiation Measurements. – 2005. – Vol. 39. – P. 387–390.

USE OF THE ACTIVE WELL COINCIDENCE COUNTER FOR THE SEMICONDUCTOR NEUTRON DETECTOR DEVELOPMENT**D.V. Kutniy, V.E. Kutniy, N.P. Odeychuk, V.E. Tovkanetz, A.V. Rybka, A.A. Zakharchenko***National science center "Kharkov institute of physics and technology"**E-mail: d_kutniy@kipt.kharkov.ua*

The opportunity of neutron registration from isotopic source $^{241}\text{AmLi}$ by solid state semiconductor detector based on high purity germanium and Cd-converter was reviewed. The measurement of gamma background of isotopic neutron source $^{241}\text{AmLi}$ in the range 200...800 keV was conducted. The main gamma-ray lines with an intensity $\geq 2 \times 10^{-6} \%$ were identified. It was founded that the appearance of prompt gamma-rays 558.6 and 651.3 keV was a result of neutrons and Cd-converter interaction. Efficiency of neutrons registration by coaxial germanium detector $\varnothing 50.5 \times 42.5$ mm was estimated.

KEY WORDS: neutron, detector, gamma-irradiation, $^{241}\text{AmLi}$, converter, Cd, nuclear reactor, efficiency of registration.