

УДК 539.1.05:539.122

**РАСЧЕТ ПОПРАВОК НА ИСТИННОЕ СУММИРОВАНИЕ КАСКАДНЫХ  
γ -КВАНТОВ НА ОСНОВЕ СТАТИСТИЧЕСКОГО МОДЕЛИРОВАНИЯ  
С ИСПОЛЬЗОВАНИЕМ ОЦЕНЕННЫХ ЯДЕРНЫХ ДАННЫХ**

*Берлизов А.Н. (ИЯИНАН Украины), Даниленко В.Н,  
Соловьева С.Л. (ООО «Лаборатория спектрометрии и радиометрии»),  
Казимиров А.С. (НПП «Атом комплекс прибор»)*

Эффект уменьшения или увеличения числа зарегистрированных в пиках полного поглощения отсчетов за счет истинного суммирования импульсов на выходе детектора может оказывать сильное влияние на точность результатов  $\gamma$ -спектрометрии. Необходимость учета этого эффекта на сегодня стала одним из обязательных требований, которое предъявляется современному  $\gamma$  –спектрометрическому программному обеспечению.

Эффект проявляется в измерении излучения каскадных источников и обусловлен суммированием импульсов при одновременной регистрации двух и большего числа  $\gamma$  -квантов в чувствительном объеме детектора. Это приводит к искажению измеряемого  $\gamma$  -спектра, в частности, к изменению площадей пиков полного поглощения, деформации непрерывного комптоновского распределения, а также появлению ложных пиков энергией, отсутствующей в истинном спектре излучения источника.

В отличие от эффекта случайного суммирования, где вероятность одновременной регистрации импульсов пропорциональна квадрату скорости счета на входе спектрометрического тракта, интенсивность истинного суммирования определяется геометрией измерения, характеристиками детектора и особенностями схемы распада радионуклида.

Сложность введения поправок на истинное суммирование обусловлена прежде всего необходимостью знания эффективности регистрации  $\gamma$  -излучения как по пику полного поглощения, так и полной эффективности, которая зависит от взаимного расположения и конфигурации источника и детектора, а также окружения, в котором происходит рассеяние и обратное отражение  $\gamma$  -излучения. Проблема усугубляется при измерении излучения объемного источника, который эффективно поглощает и рассеивает собственное излучение.

Корректный расчет требует учета возможной анизотропии углового распределения испускаемых каскадных квантов. Кроме того, при измерении источника  $\beta^+$ -излучения необходимо учитывать совпадение  $\gamma$  -излучения с аннигиляционными (511 кэВ) квантами. Истинным может быть совпадение  $\gamma$  -излучения источника и возбуждаемого им в материале источника, детектора и защиты характеристического и тормозного излучения электронов и  $\beta$  -частиц. Для детекторов, чувствительных к рентгеновскому излучению (низкоэнергетические или широкодиапазонные детекторы), существенным может оказаться истинное суммирование импульсов от  $\gamma$  - и рентгеновского излучения, возникающего в процессе внутренней конверсии и при К-захвате. Для детекторов, чувствительных к электронам, можно ожидать влияния совпадения  $\gamma$  -излучения с конверсионными электронами и непрерывным  $\beta$  -излучением.

Все это приводит к тому, что ни один из предложенных на сегодня аналитических и полуэмпирических методов введения поправок на истинное суммирование не обладает достаточной точностью и универсальностью [1—5]. Альтернативой является расчет с применением метода статистических испытаний (метод Монте-Карло).

Моделирование методом Монте-Карло хорошо себя зарекомендовало и широко используется для расчета эффективности и функций отклика детекторов ионизирующего излучения и детектирующих систем сложной конфигурации. Применить данный подход для расчета поправок на истинное суммирование в случае измерения излучения объемных источников впервые было предложено в работе [6]. В дальнейшем моделирование методом Монте-Карло использовали для расчета поправок при измерении излучения с помощью детекторов колодезного типа [7, 8].

Сравнение результатов расчета с экспериментом показало возможность получения низкой погрешности (в пределах 10—15%) оценок корректирующих факторов и перспективность

использования этого метода.

В работе [9] поправки рассчитывали с помощью модифицированной версии кода MCNP [10] в комбинации с оцененными ядерными данными ENSDF [11], содержащими наиболее полную информацию о схеме распада радионуклидов. Такая комбинация решает указанные проблемы. Погрешность получаемых оценок корректирующих факторов фактически определяется погрешностью описания геометрии измерения и современными знаниями свойств распада радионуклида. Тестирование показало хорошее согласие поправок на истинное суммирование, полученных экспериментальным и теоретическим путем. Кроме того, была показана возможность расчета поправок для антикомптоновских спектрометров, где влияние эффекта истинного суммирования является гораздо более значительным. В настоящей работе описывается программа TC для расчета поправок на истинное суммирование методом Монте-Карло на основе статистического моделирования с использованием оцененных ядерных данных ENSDF.

**Методика расчета.** Программа TC позволяет рассчитывать поправки на истинное суммирование каскадных  $\gamma$ -квантов для произвольных  $u$ -излучающих радионуклидов и точечных и объемных источников с применением сцинтилляционных и особо чистых германиевых детекторов. Данные ENSDF дополняются информацией о вероятности радиационных и нерадиационных переходов при заполнении вакансий на глубоких атомных оболочках. Вместе с вероятностью электронного захвата для разных атомных оболочек, а также теоретическими коэффициентами внутренней конверсии они используются для оценки выхода характеристического излучения. На основе всей совокупности данных с помощью программы TC моделируется радиоактивный распад заданного радионуклида с попеременным использованием аналогового и неаналогового режима. В аналоговом режиме имитируются внутриядерные и внутриатомные каскады, сопровождаемые испусканием коррелированного  $\gamma$ - и рентгеновского излучения. Результаты позволяют определить площадь пиков  $S_a$  отражающих влияние эффектов истинного суммирования. В неаналоговом режиме испускаемые в процессе распада частицы перемещаются независимо одна от другой, а результаты расчета отражают площадь наблюдаемых пиков  $S_n$ . Отношение площадей пиков  $KF = S_n / S_a$  и есть искомые корректирующие факторы.

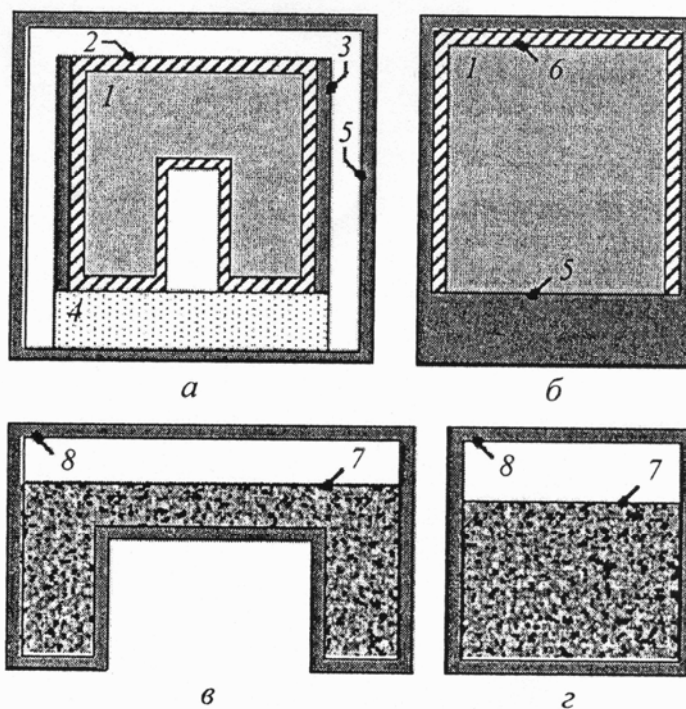
Реализованная схема расчета наряду с  $\gamma$ — $\gamma$ -совпадениями учитывает корреляции  $\gamma$ -излучения с аннигиляционным и характеристическим излучением  $K$ - и  $L$ -серий, возникающим вследствие эффектов внутренней конверсии и  $K$ -захвата. Кроме того, учитываются анизотропия угловых корреляций каскадных  $\gamma$ -квантов и временная динамика распада, обусловленная конечным временем жизни возбужденных состояний дочернего ядра. Функции угловых корреляций  $\gamma$ -излучения рассчитываются на основе спина ядерных состояний, мультипольности и параметров смешивания соответствующих  $\gamma$ -переходов. Перемещение частиц в заданной пользователем геометрии измерения моделируется с помощью метода Монте-Карло.

Входными параметрами программы являются заряд, масса и изомерный индекс радионуклида, число испытаний, геометрические размеры и элементный состав материалов конструкций детектора и источника (см. рисунок). Источники излучения располагаются на оси симметрии детектора. Распределение активности в материале источников считается равномерным. Возможен расчет для точечного источника на произвольном удалении от крышки детектора. В качестве материала конструктивных элементов детектора и источника задаются произвольные смеси химических элементов, соединений и других материалов. Предусмотрена возможность создания и учета собственных материалов пользователя. Коэффициенты ослабления  $\gamma$ -излучения рассчитываются на основе коэффициентов ослабления химических элементов. Результаты расчета содержат корректирующие факторы и эффективность регистрации для каждой  $\gamma$ -линии источника, а также стандартные погрешности величин.

**Результаты тестирования.** Тестировали программу в два этапа. На первом этапе сравнивали результаты расчетов по программам TC и MCNP с использованием подхода [9] для различных конфигураций источников и детекторов. В табл. 1 приведены результаты сравнения корректирующих факторов, рассчитанных для детектора с кристаллом из особо чистого

германия относительной эффективностью 61%, и источника в виде сосуда Маринелли объемом 1 л. Их характеристики таковы:

Детектор	
Внешний диаметр/толщина, см	7,4x5,3
Внутренний диаметр/толщина, см	0,86x1,63
Толщина «мертвого слоя», см	0,07
Толщина держателя кристалла из алюминия, см	0,1
Расстояние до крышки детектора, см	0,35
Толщина стенки алюминиевого стакана детектора, см	0,15
Толщина рассеивателя, расположенного с обратной стороны кристалла, см	3
Источник	
Внешний диаметр/толщина, см	15x9,3
Внутренний диаметр/толщина, см	9,6x6,7
Толщина полиэтиленовой стенки сосуда, см	0,2
Высота наполнения сосуда, см	8,9
Материал	Вода плотностью 1 г/см <sup>3</sup>



Используемые для расчета модели детекторов и объемных источников: *а, б* — коаксиальный/планарный и сцинтилляционный детектор соответственно; *в* — сосуд Маринелли; *г* — цилиндрическая кювета: / — кристалл; 2 — неактивный («мертвый») слой; 3 — держатель кристалла; 4 — рассеиватель, имитирующий наличие конструктивных элементов; 5 — упаковка кристалла; б — рефлектор; 7 — радиоактивный источник; 8 - стенки сосудов

**Таблица 1. Корректирующие факторы на истинное суммирование, рассчитанные по программам ТС и MCNP, для измерения  $\gamma$ -излучения  $^{152}\text{Eu}$  с помощью детектора из особо чистого германия относительной эффективностью 61% и сосуда Маринелли объемом 1 л**

Энергия кэВ	Интенсивность	Погрешность интенсивности, %	ТС		MCNP		Отклонение, %	Критерий согласованности
			Поправка	Погрешность, %	Поправка	Погрешность, %		
121,8	0,286	0,27	1,139	0,31	1,132	0,21	0,66	1,64
244,7	0,076	0,3	1,169	0,69	1,173	0,39	-0,34	0,43
295,9	0,0045	1,6	1,233	3,10	1,217	1,62	1,30	0,37
444,0	0,0282	0,9	1,183	1,39	1,182	0,75	0,09	0,05
488,7	0,0042	1,1	1,187	3,79	1,211	2,01	-1,98	0,47
564,0	0,0049	1,8	1,158	3,60	1,100	1,97	4,98	1,23
688,7	0,0086	1,3	1,045	2,89	1,056	1,56	-1,00	0,32
810,5	0,0032	1,2	0,955	4,74	0,890	2,76	6,80	1,26
867,4	0,042	0,6	1,225	1,41	1,195	0,78	2,46	1,53
964,1	0,146	0,2	1,076	0,77	1,070	0,46	0,57	0,62
1005,3	0,0065	1,0	1,191	3,84	1,152	2,07	3,27	0,76
1085,9	0,102	0,3	0,976	0,93	0,978	0,56	-0,18	0,19
1112,1	0,136	0,22	1,056	0,82	1,050	0,50	0,57	0,59
1212,9	0,014	0,6	1,228	2,72	1,193	1,47	2,86	0,93
1408,0	0,210	0,16	1,066	0,71	1,056	0,45	0,91	1,12
1457,6	0,005	1,3	0,943	4,51	0,936	2,63	0,71	0,14

Расчеты проводили для  $\gamma$ -излучения, испускаемого при распаде  $^{152}\text{Eu} \rightarrow ^{152}\text{Sm}$ . Критерий согласованности экспериментальных и расчетных данных рассчитывали по формуле

$$u = \frac{|CF_{ТС} - CF_{MCNP}|}{\sqrt{\sigma_{ТС}^2 + \sigma_{MCNP}^2}} \leq u_{\alpha},$$

где  $CF$  — корректирующий фактор;  $\sigma_{ТС}$ ,  $\sigma_{MCNP}$  — стандартные погрешности корректирующих факторов;  $u_{\alpha}$  — квантиль распределения Стьюдента для бесконечного числа степеней свободы и доверительной вероятности  $1-\alpha/2$ . Приведенные данные свидетельствуют об отсутствии значимых отличий результатов расчетов по обеим программам при высоком уровне надежности  $\alpha = 0,1$  ( $u_{0,1} = 1,64$ ).

Дальнейшее сравнение проводили для каскадных  $\gamma$ -квантов  $^{60}\text{Co}$ . Были протестированы сосуды Маринелли, цилиндрические и дисковые источники различных размеров с помощью детекторов коаксиального и планарного из особо чистого германия, сцинтилляционного на основе кристаллов NaI(Tl). Полученные корректирующие коэффициенты свидетельствовали о хорошем совпадении результатов расчета по обеим программам.

На следующем этапе использовали спектры МАГАТЭ, полученные в рамках программы тестирования  $\gamma$ -спектрометрического программного обеспечения 2002 г. [12]. Спектры измеряли с помощью двух коаксиальных детекторов из особо чистого германия относительной эффективностью 33 и 96,3% и двух объемных источников различной конфигурации — сосуда Маринелли объемом 0,5 л и цилиндрического стакана объемом 100 мл. Спектры обрабатывали с помощью спектрометрического пакета LSRM-2000. Поправки на истинное суммирование рассчитывали по программе ТС на основе конфигурации, размеров и материала источников и детекторов [12]. Полученную активность радионуклидов сравнивали с паспортной (табл. 2).

Таблица 2. Расчетная активность радионуклидов с использованием спектров МАГАТЭ

Радионуклид	Без учета поправок, рассчитанных по программе ТС		С учетом поправок, по программе ТС	
	Отношение измеренной активности к паспортной	Абсолютная погрешность отношения	Отношение измеренной активности к паспортной	Абсолютная погрешность отношения
Сосуд Маринелли, детектор из особо чистого германия относительной эффективностью 33%				
<sup>133</sup> Ba	0,93	0,04	0,975	0,034
<sup>60</sup> Co	0,91	0,11	1,003	0,012
<sup>51</sup> Cr	1,016	0,023	1,016	0,023
<sup>152</sup> Eu	0,93	0,07	0,971	0,031
<sup>22</sup> Na	0,80	0,12	0,988	0,028
Цилиндрический сосуд, детектор из особо чистого германия относительной				
<sup>133</sup> Ba	0,83	0,04	1,006	0,035
<sup>60</sup> Co	0,81	0,12	1,004	0,018
<sup>51</sup> Cr	0,982	0,025	0,982	0,025
<sup>152</sup> Eu	0,85	0,09	1,036	0,027
<sup>22</sup> Na	0,70	0,15	1,016	0,020

Как следует из представленных данных, введение поправок на истинное суммирование существенно улучшает точность измерения активности радионуклидов  $\gamma$ -спектрометрическим методом.

**Выводы.** На основе метода Монте-Карло создана программа ТС для расчета поправок на истинное суммирование при измерении излучения каскадных источников. При ее разработке были учтены эффекты истинного суммирования, анизотропия угловой корреляции каскадных  $\gamma$ -квантов и временная динамика распада, обусловленная конечным временем жизни возбужденных состояний дочернего ядра.

ТС версии 1.0 входит в состав спектрометрических пакетов LSRM-2000 и AcpWin, которые учитывают эффекты истинного суммирования при проведении  $\gamma$ -спектрометрических исследований. Расчетный модуль дополнен графическим интерфейсом, позволяющим редактировать материалы и геометрические размеры детектора и источника. Предусмотрена возможность проведения расчетов для нескольких радионуклидов и различной геометрии измерения.

### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Андреев Д.С., Ерохина К.И., Звонов В.С., Лемберг И.Х. Учет каскадных переходов при определении абсолютного выхода гамма-лучей. - Приборы и техн. exper., 1972, т. 5, с. 63—65.
2. Андреев Д.С., Ерохина К.И., Звонов В.С., Лемберг И.Х. Определение эффективности регистрации гамма-квантов в пиках энергии с помощью нуклидов со сложной схемой распада в условиях близкой геометрии. — Известия АН СССР, сер. физ., 1973, т. 37, с. 1609—1612.
3. Kolotov V.P., Atrashkevich V.V., Gelsema S. Estimation of true coincidence corrections for voluminous sources. — Rad. Nucl. Chem., 1996, v. 210, Xa 4, p. 183—196.
4. Ramos-Lerate I., Barrera M., Ligeró R., Casas-Ruiz M. A new summing-correction method for gamma-efficiency calibration with multi-gamma-ray radionuclides. — Nucl. Instrum. Mem. Phys. Res., 1997, v. A 395, p. 202—206.
5. Sima O. Accurate calculation of total efficiency of Ge well-type detectors suitable for efficiency calibration using common standard source. — Ibid., 2000, v. A 450, p. 98—108.
6. Decombaz M., Costely J.-J., Laedermann J.-P. Coincidence-summing corrections for extended

sources in gamma-ray spectrometry using Monte Carlo simulation. — *Ibid.*, 1992, v. 312, p. 152—159.

7. **Sima O., Arnold D.** Self-attenuation and coincidence-summing corrections calculated by Monte Carlo simulations for gamma-spectrometric measurements with well-type germanium detectors. — *Appl. Radiat. Isot.*, 1996, v. 47, p. 889—893.

8. **Laborie J.-M., Le Petit G., Abt D., Girard M.** Monte Carlo calculation of the efficiency calibration curve and coincidence-summing corrections in low-level gamma-ray spectrometry using well-type HPGe detectors. — *Ibid.*, 2000, v. 53, p. 57—62.

9. **Berlizov A.N., Tryshyn V.V.** A Monte Carlo approach to true-coincidence summing correction factor calculation for gamma-ray spectrometry applications. — *Rad. Nucl. Chem.*, 2005, v. 264, p. 169—174.

10. **Briesmeister J.** MCNP — a General Monte Carlo JV-particle Transport Code. LA-12625-M, 1997.

11. **Tuli J.** Evaluated Nuclear Structure Data File. A Manual for Preparation of Data Sets. BNL-NCS-51655, Rev. 87, 1987.

12. **Los Arcos J., Blaauw M., Fazinic S., Kolotov V.P.** The 2002 IAEA test spectra for low-level gamma-ray spectrometry software. — *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res.*, 2005, v. A 536, № 1—2, с. 189—195.

Поступила в Редакцию 5.10.05