

Моделирование чувствительности литийсодержащих кристаллических сцинтилляторов к нейтронному излучению

В статье представлены результаты моделирования методом Монте-Карло чувствительности литийсодержащих детекторов CLYC, NaIL, CLLB к тепловым нейтронам. Показано отличие чувствительности и глубины свободного пробега нейтрона обогащенного и необогащенного по изотопу ${}^6\text{Li}$ сцинтиллятора CLYC. Проведен анализ распределения альфа-частиц и нейтронов в объеме сцинтиллятора, который указывает на низкую эффективность регистрации в образцах с естественным содержанием ${}^6\text{Li}$ в связи с тем, что не все нейтроны реагируют с материалом кристалла. По результатам Монте-Карло моделирования чувствительности сцинтилляторов в зависимости от направления облучения, показано, что в торцевой и боковой геометрии при размерах более 38 мм отличие в чувствительности при изменении направления потока нейтронов связано лишь с размером поперечного сечения сцинтиллятора и обогащения ${}^6\text{Li}$ при одинаковом значении удельной чувствительности. Сравнение полученных модельных результатов с доступными экспериментальными данными для сцинтилляторов NaIL и CLLB показало достоверность разработанных моделей и методов расчета.

Ключевые слова: ионизирующее излучение, детектирование нейтронов, литийсодержащие сцинтилляторы, чувствительность к нейтронному излучению, тепловые нейтроны, CLYC, CLLB, NaIL, FLUKA, метод Монте-Карло.

И.А.Лагуцкий¹, Д.И.Комар¹,
М.В.Давыдов²

¹Научно-производственное унитарное предприятие «АТОМТЕХ» (г. Минск, Беларусь)

²Белорусский государственный университет информатики и радиоэлектроники (г. Минск, Беларусь)

В настоящее время развитие устройств и систем радиационного контроля требует применения высокоэффективных детекторов с минимальными размерами, что позволит службам радиационной безопасности максимально быстро производить инспекцию различных объектов.

В большинстве устройств и систем регистрации гамма-излучения и нейтронов используются гелиевые счетчики. Габаритные размеры таких детекторов затрудняют их применение в компактных устройствах, что обуславливает необходимость использования детекторов другого типа.

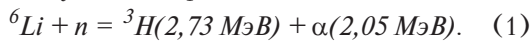
Одной из альтернатив гелиевым счетчикам являются литийсодержащие кристаллические сцинтилляторы, которые сочетают в себе функции гамма-спектрометрии и детектирования нейтронов. Основными коммерчески доступными детекторами являются CLYC [$\text{Cs}_2\text{LiYCl}_6(\text{Ce})$], NaIL [$\text{NaI}(\text{Li+Tl})$] и CLLB [$\text{Cs}_2\text{LiLaBr}_6(\text{Ce})$], характеристики которых представлены в табл.1.

Табл.1. Основные характеристики литийсодержащих сцинтилляторов.

Характеристика кристалла	CLYC	NaI(Tl+Li)	CLLB
Плотность, г/см ³	3,3	3,66	4,2
Световойход, фотонов/МэВ	20000	35000	45000
Время высвета, нс	1000	250	190
Максимум спектра излучения, нм	370	419	420
Энергетическое разрешение, % (относительно линии 662 кэВ)	4,5	6,5–7,0	3,1
Содержание лития	~1,2%	До 8%, обычно 1% в коммерческих образцах	~0,78%

Регистрация нейтронов при использовании этих детекторов обеспечивается за счет присутствия лития. В натуральном виде литий представлен в виде смеси изотопов, основными из которых являются ⁷Li и ⁶Li в соотношении 92,5% и 7,5% соответственно [1].

Изотоп ⁶Li обладает высоким сечением захвата тепловых нейтронов, распадаясь на тритон ³H и альфа-частицу с общим энерговыделением 4,78 МэВ. При этом реакция протекает следующим образом [2]:



Вероятность прохождения данной ядерной реакции связана с энергией нейтронов, при этом увеличивается с уменьшением их энергии.

Для сравнения эффективности регистрации нейтронных детекторов используется характеристика чувствительности к потоку тепловых нейтронов. Это связано с тем, что наибольшая чувствительность как у гелиевых счетчиков, так и у литий- и борсодержащих детекторов наблюдается для тепловых нейтронов, энергия которых составляет 0,0253 эВ. Именно это обуславливает наличие объемного полиэтиленового замедлителя у детекторов нейтронов на основе гелиевых счетчиков, который необходим для замедления нейтронов и повышения чувствительности.

Целью представленных исследований была разработка Монте-Карло-моделей кристаллических сцинтилляционных детекторов CLYC, CLLB, NaIL для определения чувствительно-

сти детекторов различных размеров с разным содержанием ⁶Li.

Основная часть

Для оценки чувствительности литийсодержащих сцинтилляторов к тепловым нейтронам использовалось численное моделирование с помощью методов Монте-Карло в программном комплексе FLUKA, имеющем графический интерфейс Fflair, позволяющий значительно сократить время разработки моделей и повысить эффективность обработки результатов.

Моделирование проводилось для цилиндрических сцинтилляторов различного размера, заключенных в слой политетрафторэтилена (PTFE, тефлон) толщиной 1 мм, являющийся световым отражателем. Элементы капсулирования кристалла и корпус устройства в модели не учитывались как материалы, слабо взаимодействующие с нейтронами. Число нейтронов, которые попали в объем сцинтиллятора, принималось равным числу нейтронов, которые прошли через отражатель в направлении кристалла.

Исследовались две геометрии облучения сцинтиллятора: торцевая и боковая. Использование в расчетах двух геометрий связано с тем, что из-за цилиндрической формы кристалла в торцевой геометрии поверхность взаимодействия нейтронов с кристаллом представляет из себя круг, а при боковом облучении прямоугольник. Облучение сцинтиллятора проводилось параллельным пучком тепловых

нейтронов, который полностью перекрывает площадь детектора.

Основная часть моделирования параметра чувствительности проводилась для сцинтиллятора CLYC(Ce) как наиболее перспективного, исходя из нескольких соображений:

- доступность на мировом рынке;
- высокое содержание лития в составе;
- возможность работы как с обогащенным, так и с природным содержанием лития;

- высокое энергетическое разрешение (порядка 4,5% для линии 662 кэВ изотопа ^{137}Cs).

Первым этапом моделирования было изучение распределения нейтронов и альфа-частиц в сцинтилляторе с целью определения эффективности регистрации и эффективной длины детектора, влияющих на выбор оптимального размера детектора.

В ходе моделирования были получены данные по распределению альфа-частиц и

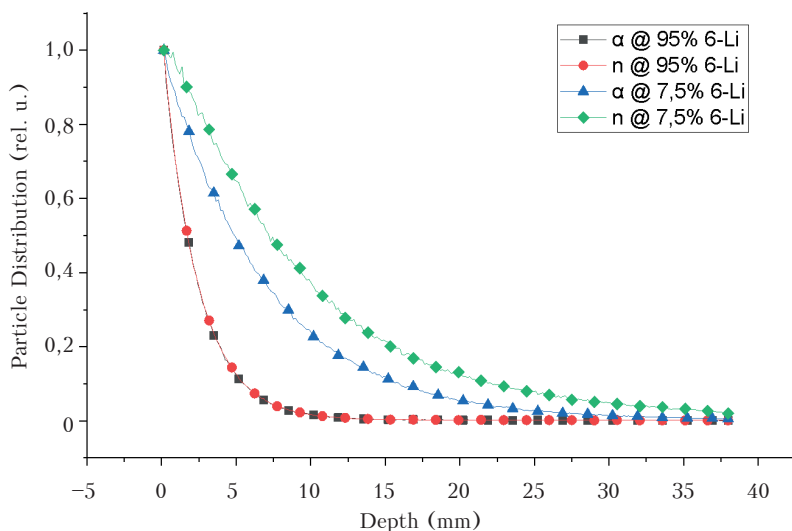


Рис.1. Распределение нейтронов и альфа-частиц в цилиндрическом сцинтилляторе CLYC(Ce) при облучении с торца детектора.

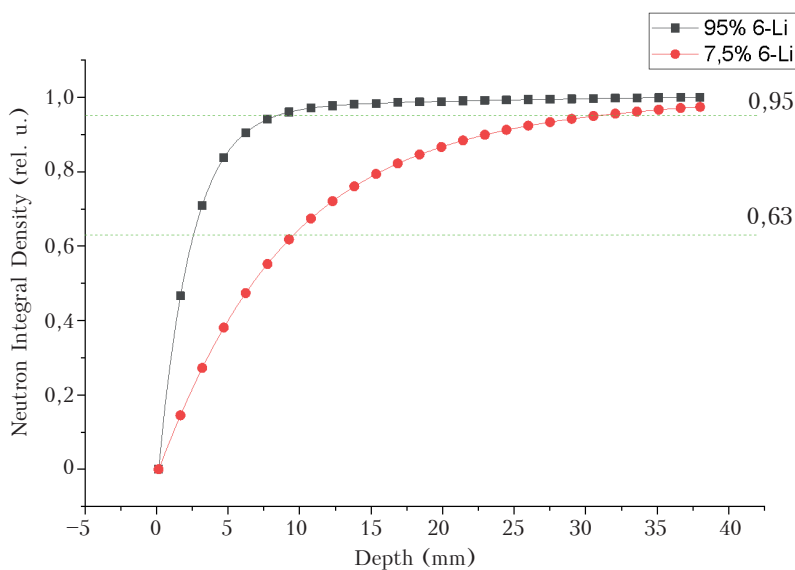


Рис.2. Интегральное распределение нейтронов в объеме цилиндрического сцинтиллятора CLYC(Ce) при облучении с торца детектора.

нейтронов в объеме детектора в случае облучения детектора параллельным пучком нейтронов, перекрывающим всю площадь детектора в торцевой геометрии. Глубина распространения нейтронов и альфа-частиц в обогащенном и необогащенном сцинтилляторе представлены на рис.1.

Как видно из рис.1, при естественной концентрации ^6Li регистрация нейтронов происходит практически во всем объеме детектора. При этом отличие форм кривых распределения альфа-частиц и нейтронов для кристалла подтверждает низкую эффективность регистрации последних, т. к. они поглощаются в веществе детектора и не всегда взаимодействуют с атомами ^6Li в связи с их малой объемной концентрацией.

В случае обогащенного сцинтиллятора картина меняется, при этом кривые распределения альфа-частиц и нейтронов совпадают, что свидетельствует о повышении эффективности регистрации нейтронов. Необходимо

Табл.2. Результаты моделирования чувствительности сцинтиллятора CLYC к тепловым нейтронам в торцевой геометрии.

Сцинтиллятор	CLYC					
Геометрия измерения	Торцевая					
Обогащение лития	7,5%			95,0%		
Размер кристалла, мм	Ø38×38	Ø50×50	Ø63×63	Ø38×38	Ø50×50	Ø63×63
Площадь чувствительной поверхности, см ²	11,34	19,63	31,17	11,34	19,63	31,17
Чувствительность, (имп/с)/((нейтр/с)/см ²)	2,21	3,86	6,14	8,63	14,87	23,62
Удельная чувствительность, ((имп/с)/см ²)/((нейтр/с)/см ²)	0,19	0,20	0,20	0,76	0,76	0,76

Табл.3. Результаты моделирования чувствительности сцинтиллятора CLYC к тепловым нейтронам в боковой геометрии.

Сцинтиллятор	CLYC					
Геометрия измерения	Боковая					
Обогащение лития	7,5%			95,0%		
Размер кристалла, мм	Ø38×38	Ø50×50	Ø63×63	Ø38×38	Ø50×50	Ø63×63
Площадь чувствительной поверхности, см ²	14,44	25,00	39,69	14,44	25,00	39,69
Чувствительность, (имп/с)/((нейтр/с)/см ²)	2,67	4,72	7,57	10,72	18,72	29,47
Удельная чувствительность, ((имп/с)/см ²)/((нейтр/с)/см ²)	0,18	0,19	0,19	0,74	0,75	0,74

отметить, что длина свободного пробега тепловых нейтронов в объеме сцинтиллятора значительно снижается при обогащении.

Для определения эффективной толщины сцинтиллятора проведена оценка количества зарегистрированных нейтронов в зависимости от глубины (рис.2).

Согласно проведенным расчетам следует, что 63% нейтронов поглощаются на глубине 2,58 мм и 9,58 мм для сцинтилляторов с повышенным и естественным содержанием ⁶Li (далее – обогащенный и натуральный сцинтилляторы), а 95%-поглощение нейтронов наблюдается при толщине детекторов 8,6 мм и 31 мм соответственно. Таким образом, эффективная длина детектора отличается примерно в 3,7 раза для обогащенного и натурального сцинтилляторов. Поэтому на практике для обогащенного сцинтиллятора нецелесообразно делать детектор толщиной более 10 мм в направлении излучения, если основной задачей данного детектора является обнаружение его источника. Увеличение толщины позволит увеличить чув-

ствительность к гамма-излучению, но никак не будет влиять на время обнаружения нейтронов. В случае же с натуральным сцинтиллятором имеет смысл использовать кристалл размером Ø38×38 мм, что позволит эффективно использовать весь объем детектора в устройствах раздельного детектирования гамма-излучения и нейтронов, так как в этом случае больший объем детектора обеспечит быстрое обнаружение источников гамма-излучения и их идентификацию благодаря высокому энергетическому разрешению кристалла. Использование детектора с природным содержанием лития упрощает процесс изготовления, удешевляет его и делает более доступным.

Следующим этапом моделирования было определение чувствительности сцинтиллятора CLYC в торцевой и боковой геометрии к потоку тепловых нейтронов для естественного и повышенного содержания изотопа ⁶Li в составе детектора. Геометрия моделирования осталась прежней, менялась лишь ориентация кристалла в пространстве.

В связи с особенностями моделирования ядерных реакций методами Монте-Карло с использованием программного комплекса FLUKA, определение чувствительности проводилось косвенным методом через определение количества энергии, которая выделится в объеме кристалла при детектировании альфа-частиц, образовавшихся в результате взаимодействия нейтронов с ${}^6\text{Li}$. Этот метод является более достоверным, так как при расчете энергии учитываются лишь альфа-частицы, которые будут зарегистрированы детектором.

Для определения чувствительности сцинтиллятора к нейтронному излучению через энергию поглощенных альфа-частиц использовалась формула:

$$\eta = \frac{E}{E_{(n,\alpha)} \cdot \Phi}, \quad (2)$$

где E – количество энергии, выделившейся в результате взаимодействия альфа-частицы со сцинтиллятором, МэВ·частиц·с⁻¹; $E_{(n,\alpha)}$ – энергия альфа-частицы, образовавшейся в результате реакции нейтрона с ${}^6\text{Li}$, которая составляет 2,05 МэВ; Φ – поток нейтронов на единицу площади, нейтрон·с⁻¹·см⁻².

При этом удельная чувствительность на единицу площади детектора определялась по следующей формуле:

$$\varepsilon = \frac{\eta}{S}, \quad (3)$$

где η – чувствительность детектора, (имп·с⁻¹)/(нейтрон с⁻¹·см⁻²), S – поперечное сечение детектора, см².

Результаты моделирования чувствительности сцинтиллятора CLYC(Ce) к тепловым нейтронам для торцевой и боковой геометрий представлены в табл.2 и 3 соответственно.

Из результатов моделирования следует, что чувствительности обогащенного и необогащенного сцинтиллятора отличаются примерно в 3,9 раза для торцевой геометрии и в 3,9–4 раза для боковой геометрии. При этом зна-

чения для боковой геометрии имеют небольшой разброс в связи с тем, что на границе сцинтиллятора длина пробега нейтрона превышает геометрические размеры сцинтиллятора, при этом в боковой геометрии наблюдается большая чувствительность к нейтронам из-за большей площади поперечного сечения.

Стоит отметить, что для обеих геометрий практически отсутствует зависимость удельной чувствительности от размера детектора, т. к. из числа исследуемых кристаллов все имели размер, превышающий длину свободного пробега нейтрона в сцинтилляторе. При этом удельная чувствительность детектора в торцевой и боковой геометрии отличаются незначительно, что связано с ограниченной длиной пробега нейтрона в пределах размеров сцинтиллятора.

Таким образом, для обеспечения максимальной чувствительности к нейтронам наиболее эффективным является проведение измерений в боковой геометрии, что увеличивает чувствительность за счет увеличения эффективной площади детектора. Также может рассматриваться использование тонких пластин большой площади при условии обогащения сцинтиллятора по изотопу ${}^6\text{Li}$, позволяющее получить высокую чувствительность при малом объеме сцинтиллятора, но обуславливающее более высокую анизотропию по сравнению с применением цилиндрических сцинтилляторов. Сцинтиллятор в виде тонкой пластины может использоваться в задачах по определению направления на источник излучения благодаря максимальной эффективности регистрации при падении излучения по нормали к поверхности.

Для сравнения чувствительности и проверки достоверности результатов моделирования были проведены дополнительные расчеты для сцинтилляторов NaIL и CLLB. В табл.4 представлены результаты моделирования и данные о практически проверенной чувствительности, найденные в открытых источниках [2].

Табл.4. Результаты моделирования чувствительности литийсодержащих сцинтилляторов к тепловым нейтронам.

Сцинтиллятор	CLYC	NaIL		CLLB
Обогащение лития	95,0%	100,0%		95,0%
Геометрия измерения	Боковая	Боковая	Боковая	Боковая
Размер кристалла, мм	Ø50×50	Ø50×50	Ø50×100	Ø50×50
Площадь чувствительной поверхности, см ²	25,00	25,00	50,00	25,00
Чувствительность, (имп/с)/((нейтр/с)/см ²)	18,72	13,39	26,77	21,59
Удельная чувствительность, ((имп/с)/см ²)/((нейтр/с)/см ²)	0,75	0,54	0,54	0,86
Чувствительность согласно литературным источникам, (имп/с)/((нейтр/с)/см ²)	20	13	26	22

Полученные данные указывают на то, что чувствительность детектора NaIL ниже, чем у CLYC, что связано с меньшим содержанием лития в детекторе. При этом чувствительности сцинтиллятора CLYC и CLLB сопоставимы, несмотря на более низкое содержание лития в составе (1,2% и 0,78% соответственно) из-за его более высокой плотности (3,3 г/см³ и 4,2 г/см³ соответственно). Однако несмотря на более низкую чувствительность сцинтиллятора NaIL к нейтронам, он может найти применение в случаях, когда требуется более высокая чувствительность и отсутствует необходимость в высоком энергетическом разрешении для гамма-излучения. Подобные решения будут значительно дешевле по сравнению с использованием кристаллов CLYC и CLLB, что позволяет обеспечить большую доступность данных средств измерений.

Также из приведенных результатов следует, что расхождение экспериментальных данных с данными моделирования составляет не более 6,4% и может быть связано с отличием в геометрии экспериментальных измерений от модели [2].

Заключение

Разработаны математические модели для расчета чувствительности и эффективности литийсодержащих сцинтилляторов CLYC, NaIL и CLLB методом Монте-Карло с исполь-

зованием программного комплекса FLUKA и интерфейса Flair.

В результате моделирования установлено, что эффективная длина пробега нейтрона в сцинтилляторе CLYC составляет 8,6 мм и 31 мм для кристаллов с повышенным и естественным содержанием ⁶Li, в связи с чем для решения задач детектирования нейтронов не целесообразно использовать обогащенные кристаллы толщиной более 9–10 мм. В случае же применения необогащенного сцинтиллятора кристалл толщиной 38 мм не будет обеспечивать сопоставимую эффективность с обогащенным кристаллом меньшего размера в связи с низким содержанием изотопа ⁶Li.

Результаты моделирования для кристаллов CLYC Ø38×38, Ø50×50, Ø63×63 показали, что обогащение сцинтиллятора по изотопу ⁶Li приводит к увеличению чувствительности детектора в 3,9 раза и не зависит от толщины детектора при торцевом облучении, т. к. геометрические размеры кристалла больше длины свободного пробега нейтрона. В случае с боковой геометрией наблюдается небольшой разброс, который связан с недостаточной толщиной кристалла на краях, которая меньше длины свободного пробега нейтрона в материале.

В сравнении с CLYC сцинтиллятор NaIL согласно результатам моделирования имеет меньшую чувствительность к тепловым нейтронам. Сцинтиллятор NaIL целесообразно

использовать, когда требуются кристаллы большого объема для повышения чувствительности к гамма-излучению, но при этом имеет место ухудшение энергетического разрешения. Несмотря на меньшее содержание лития по сравнению с CLYC, CLLB показал чувствительность выше за счет большей плотности кристалла. Полученные данные для сцинтилляторов NaIL, CLYC и CLLB соответствуют данным в открытых источниках. Сцинтилля-

тор CLYC можно успешно использовать как в обогащенном, так и в естественном виде в зависимости от решаемых задач.

Разработанные Монте-Карло-модели позволяют с достаточной точностью определять чувствительность детектора, что весьма важно при разработке нового оборудования на основе литийсодержащих сцинтилляторов для задач отдельного детектирования нейтронного и гамма-излучения.

Литература

1. R.G. Downing, G.P. Lamaze, J.K. Langland, S.T. Hwang, «Neutron depth profiling: Overview and description of NIST facilities», *Journal of Research of the National Institute of Standards and Technology*, vol. 98, no. 1, pp. 109, 1993.
2. NaIL Dual Detection Neutron-Gamma Scintillator. URL: <https://www.luxiumsolutions.com/radiation-detection-scintillators/crystal-scintillators/nail-scintillation-crystals> (accessed Mar. 27, 2024).

Modeling of Sensitivity of Lithium-Containing Crystal Scintillators to Thermal Neutrons

Lagutskiy Ilya¹, Komar Damian¹, Davydov Maxim²

¹ATOMTEX SPE (Minsk, Belarus)

²Belarussian state university of informatics and radioelectronics (Minsk, Belarus)

Abstract. This paper presents the results of Monte Carlo modelling of the sensitivity of the lithium containing detectors CLYC, NaIL, CLLB to thermal neutrons. The difference between the sensitivity and the neutron freepath depth of the CLYC scintillator enriched and unenriched with the ⁶Li isotope is shown. The analysis of the distribution of alpha particles and neutrons in the scintillator volume is performed, showing the inefficiency of the unenriched scintillator due to the fact that not all neutrons react with the crystal material. Mathematical modelling by the Monte Carlo method of the scintillator sensitivity and its comparison with respect to the irradiation direction has been carried out. It is shown that for the scintillator in the face and side geometry with the size more than 38 mm the difference in sensitivity at change of the neutron flux direction is connected only with the scintillator cross section and ⁶Li concentration with the same value of the specific sensitivity. The obtained model results were compared with available experimental data for NaIL and CLLB scintillators, which showed the reliability of the developed models and calculation methods.

Keywords: ionizing radiation, neutron detection, lithium-containing scintillators, sensitivity, thermal neutrons, CLYC, CLLB, NaIL, FLUKA.

И.А.Лагуцкий¹ (нач.сектора), Д.И.Комар¹ (вед.инж.), М.В.Давыдов² (к.т.н., первый проректор)

¹Научно-производственное унитарное предприятие «АТОМТЕХ» (г. Минск, Беларусь)

²Белорусский гос. университет информатики и радиоэлектроники (г. Минск, Беларусь)

Контакты: тел. +375-33-358-92-08, Lagutskiy_IA@atomtex.com