

# МОДЕЛИРОВАНИЕ В СРЕДЕ GEANT4 СПЕКТРОВ РЕНТГЕНОФЛУОРЕСЦЕНТНЫХ И ДЕНСИТОМЕТРИЧЕСКИХ ИЗМЕРЕНИЙ

Котляревская А.С.<sup>1</sup>, Павлюк А.О.<sup>2</sup>

<sup>1</sup> НИ ТПУ, ИЯТШ, группа 0АМ32, e-mail: ask157@tpu.ru

<sup>2</sup> НИ ТПУ, ИЯТШ, и.о. директора НИЦ ВЭ, e-mail: pavlyuk17@tpu.ru

## Введение

Одной из актуальных задач в области обеспечения контроля жидких радиоактивных отходов и технологических растворов, содержащих актиниды, является разработка методик и средств их измерения (СИ). В настоящий момент к перспективным методам анализа содержания актинидов в жидкостях относятся рентгенофлуоресцентный анализ (РФА) и рентгеновская денситометрия (плотнометрия).

Математическое моделирование в данном случае выступает инструментом, значительно упрощающим проектирование новых СИ. Компьютерная модель разрабатываемого СИ позволит выявить и исключить возможные технические проблемы, связанные с выбором материалов, конструкции устройства, параметров эксплуатации и т. д.

Моделирование денситометрических и РФА-спектров может быть осуществлено имитационными методами [1]. В настоящей работе в качестве среды разработки выбран Geant4, поскольку его функциональные возможности позволяют проводить моделирование объектов исследования различной геометрии на основе метода Монте-Карло с использованием множества физических моделей для широкого диапазона энергий [2].

Целью настоящего исследования являлась разработка компьютерной модели гибридного устройства для измерения концентраций смеси актинидов в пробах радиоактивных отходов на основе специализированного программного продукта Geant4.

## Структура модели

Перспективность гибридного устройства связана с возможностью выполнять измерения концентраций смеси актинидов в широком диапазоне от десятых долей до сотен г/л с уровнем погрешности не более 10 % за счет одновременного выполнения пробы разными методами (РФА и денситометрии (рис. 1). Подобный подход был продемонстрирован при разработке установки комплексного определения элементов УОКЕР, созданной для применения в специальных камерах и боксах радиохимического производства в «промежуточных» растворах отработанных тепловыделяющих сборок [3]. Устройство реализует методы РФА, денситометрии и гамма-спектрометрии. В качестве источника ионизирующего излучения в установке используется <sup>241</sup>Am. Материал кюветы – полистирол.

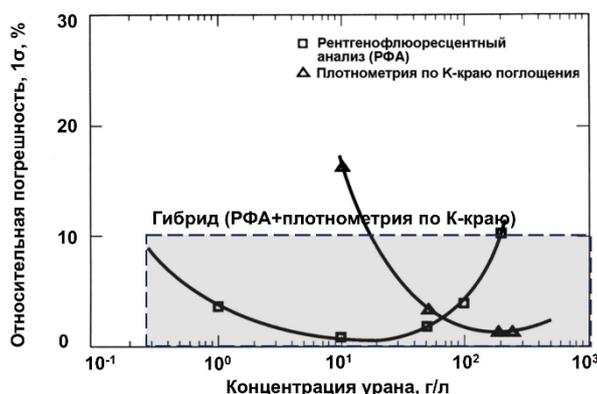


Рис. 1. Сравнение погрешности анализа растворов урана двумя методами [3]

В рамках настоящей работы предполагается усовершенствовать подход из работы [3] за счет использования в качестве источника ионизирующего излучения рентгеновской трубки, а также усовершенствовать конструкцию устройства и определить возможность применения других материалов кюветы. Для реализации данного подхода была разработана модель с несколькими

базовыми объёмами, представленными на рис. 2. Вся измерительная система помещена в стальной корпус, визуализация которого в модели отключена с целью получения информативных изображений.

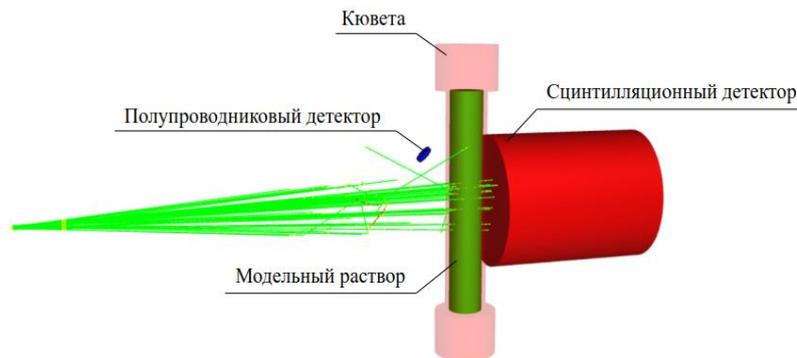


Рис. 2. Геометрия модели измерительного устройства

Зависимость интенсивности рентгеновского излучения  $I$  от энергии излучения  $E$  построена на основе формулы Крамерса:

$$I(E) = \frac{KZ}{(hc)^3} E^2 (E_0 - E), \quad (1)$$

где  $K$  – коэффициент пропорциональности;  
 $Z$  – зарядовое число материала мишени;  
 $h$  – постоянная Планка;  
 $c$  – скорость света;  
 $E_0$  – максимальная энергия излучения.

Спектр первичного излучения в модели задан в виде гистограммы «энергия – относительная интенсивность» через макрос. Создание макроса по исходным данным автоматизировано в программе Wolfram Mathematica. Также перед началом сеанса моделирования организован выбор состава модельного раствора из перечня и задание концентрации актинидов через терминал.

Основной модуль физической модели взаимодействий частиц представлен библиотекой G4EmPenelopePhysics, которая использует модель Penelope для расчёта электромагнитных взаимодействий электронов, позитронов и гамма-излучения с энергиями до 1 ГэВ [4].

Работа детекторов организована на основе встроенного класса G4UserSteppingAction. Методы данного класса на каждом шаге (отрезке траектории частицы) осуществляют проверку на принадлежность текущего положения частицы детектирующему объёму и затем сохраняют значение энерговыделения на текущем шаге. Конечная энергия частицы вычисляется путём суммирования всех значений энерговыделения частицы на траектории, принадлежащей объёму детектора.

Дополнительно в модель введена поправка на статистические флуктуации количества рождённых носителей заряда в чувствительном объёме детектора в соответствии с формулой [5]:

$$FWHM = 2,355\sigma \approx 2,355\sqrt{F\omega\omega}, \quad (2)$$

где  $FWHM$  – полная ширина на половине высоты пика;  
 $\sigma$  – среднеквадратичное отклонение энергии частицы;  
 $F$  – фактор Фано;  
 $\omega$  – энергия, затрачиваемая на рождение носителя заряда;  
 $E$  – энергия частицы.

Для полупроводникового детектора  $F$  принят равным 0,128 [6], а  $\omega = 3,650$  эВ (энергия рождения электронно-позитронной пары для Si). Таким образом, для кремниевого полупроводникового детектора  $FWHM \approx 0,0509\sqrt{E}$  (кэВ).

Для сцинтилляционного детектора  $F$  принят равным 1 [5], а  $\omega$  вычислена по следующей формуле:

$$\omega = \frac{hc}{\lambda\eta\varepsilon}, \quad (3)$$

где  $\lambda$  – средняя длина волны фотонов, образуемых в сцинтиляторе (550 нм для CsI);  
 $\eta$  – световой выход сцинтилятора в долях (0,135 для CsI);

$\varepsilon$  – квантовый выход фотокатода ФЭУ (0,1).

Таким образом, исходя из формул 2 и 3, для сцинтилляционного детектора CsI(Tl)  $\omega = 167$  эВ, а  $FWHM \approx 0,962\sqrt{E}$  (кэВ).

Введение поправки реализовано путём перерасчёта энергии частицы в соответствии с распределением Гаусса с заданным  $\sigma$ . После перерасчёта осуществляется запись энергии в гистограмму Root. Подобный подход позволяет запускать симуляцию в режиме многопоточности, что значительно ускоряет процесс вычислений, но увеличивает нагрузку на оперативную память.

### Результаты моделирования

На начальном этапе проверка модели на адекватность осуществлялась по соответствию пиков, присутствующих на полученных спектрах, основным энергетическим переходам интересующих элементов (таблица 1) в рассматриваемом диапазоне (от 5 до 160 кэВ).

Таблица 1

Основные энергии рентгеновских переходов для U, Np, Pu и Am

Элемент	Энергия фотонов, кэВ			
	K-край	$K_{\alpha 1}$	$K_{\alpha 2}$	$L_{\alpha 1}$
U	115,6	98,4	94,7	13,6
Np	118,7	101,1	97,1	13,9
Pu	121,8	103,7	99,5	14,3
Am	125,0	106,5	102,0	14,6

На рис. 3 приведены предварительные результаты моделирования прохождения рентгеновского излучения ( $3 \cdot 10^7$  событий) через модельный раствор нитрата уранила с концентрацией U порядка 200 г/л для трёх материалов кювет: полистирола, нержавеющей стали и кварца. Концентрация урана подобрана таким образом, чтобы обеспечить высокую контрастность спектров при небольшой статистике.

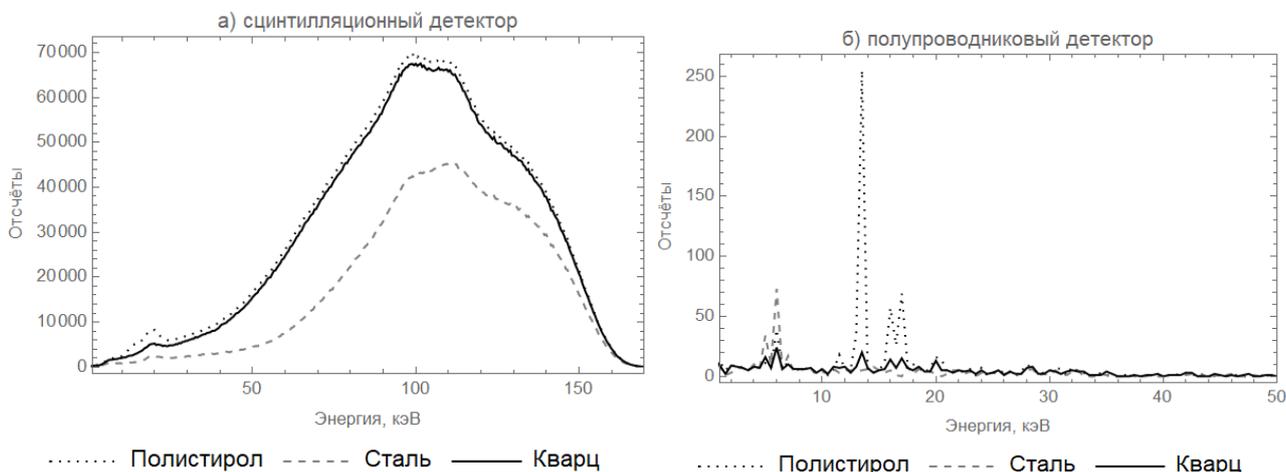


Рис. 3. Спектры для раствора нитрата уранила при различных материалах кювет: а) со сцинтилляционного детектора; б) с полупроводникового детектора

На рис. 3а различим спад интенсивности излучения с энергиями выше 115 кэВ, что соответствует K-краю поглощения U, а также прослеживаются пики, соответствующие линиям  $K_{\alpha 1}$  и  $K_{\alpha 2}$  U. При этом, в сравнении с кюветой из полипропилена, кюветы из кварца и нержавеющей стали демонстрируют меньшую пропускную способность первичного излучения на 4 % и 42 % соответственно.

На РФА-спектре (рис. 3б) линия  $L_{\alpha}$  U отчётливо различима только в случае пластиковой кюветы. В случае стальной кюветы преобладает линия  $K_{\alpha}$  Fe (6,4 кэВ), а при использовании кварца достоверно судить о наличии пиков нельзя в связи с малым количеством отсчётов.

Также проведено моделирование прохождения рентгеновского излучения через растворы, содержащие один основной элемент (U, Np, Pu или Am) в легкой матрице ( $\text{HNO}_3$ ), помещённые в кювету из полистирола (рис. 4). Спектры с полупроводникового детектора малоинформативны по причине незначительных различий в энергиях  $L_{\alpha}$  линий элементов, поэтому опущены.

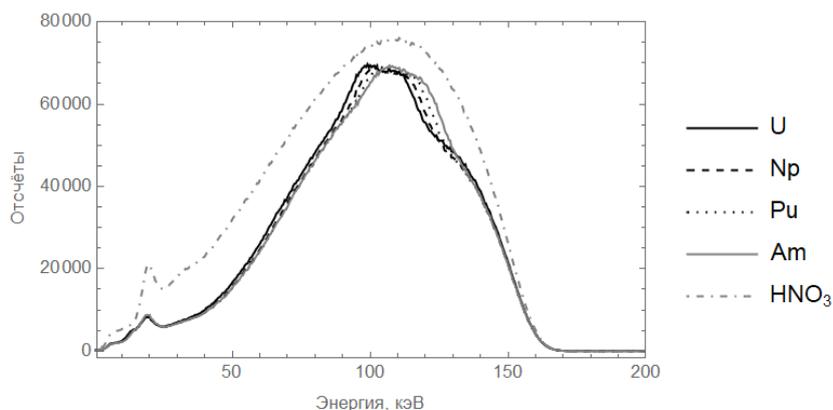


Рис. 4. Спектры со сцинтилляционного детектора для модельных растворов, содержащих один из элементов (U, Np, Pu или Am), в сравнении с пробой 1М  $\text{HNO}_3$

Ввиду того, что значения энергий  $K$ -края поглощения у U, Np, Pu и Am сравнительно близки, при сходной концентрации элементов в растворах (массовая доля каждого составляет 15 %) наблюдаемая спектральная картина практически идентична. Тем не менее, на данном этапе возможно различить сдвиг по энергиям линий  $K_{\alpha}$ .

## Заключение

Имеющаяся компьютерная модель гибридного СИ для осуществления РФА, денситометрии растворов актиноидов в жидких пробах на данном этапе разработки позволяет получать спектры рентгеновского излучения с двух детекторов и оценивать влияние материала измерительной кюветы на получаемые спектры.

Следует отметить, что полученные функции отклика детекторов пока являются «идеалистичными» т. к. в модели отсутствует учет влияния сцинтилляционных эффектов (плато комптоновского рассеяния, пик обратного рассеяния и т. п.) и электронные шумы, что будет устранено в ходе совершенствования модели. Также планируется введение в модель собственного излучения содержимого кюветы и верификация результатов на экспериментальных данных.

Работа выполнена в рамках программы Приоритет 2030 (проект № Приоритет-2030-НИИ/ЭБ-039-375-2023).

## Список использованных источников

1. Берлизов А.Н. и др. Моделирование спектров энергодисперсионных рентгенофлуоресцентных измерений актиноидов на основе метода Монте-Карло // Известия ТПУ. – 2012. – № 2. – С. 62-66.
2. Agostinelli S. и др. Geant4—a simulation toolkit // Nucl. Inst. and Methods in Phys. Res., A. – 2003. – Т. 506. № 3. – С. 250-303.
3. Белоусов М.П. и др. Установка комплексного определения параметров растворов ОТВС // АНРИ. – 2023. – № 2. – С. 50-66.
4. Guide for Physics Lists: Rev 7.0. – Текст: электронный // Geant4: официальный сайт. – 1999-2022. – URL: <https://geant4-userdoc.web.cern.ch/UsersGuides/PhysicsListGuide/html/index.html> (дата обращения: 20.09.2023).
5. PANDA: Пассивный неразрушающий анализ ядерных материалов. Справочник / под ред. Д. Райлли, Н. Энслина, Х. Смита, С. Крайнер; перевод с английского ВНИИА. – 2007. – 720 с.
6. Kotov I.V., Neal H., O'Connor P. Pair creation energy and Fano factor of silicon measured at 185 K using  $^{55}\text{Fe}$  X-rays // Nuclear Inst. and Methods in Physics Research, A. – Т. 901. – 2018. – С. 126-132.