УДК 519.245:543.427.4

МОДЕЛИРОВАНИЕ СПЕКТРОВ ЭНЕРГОДИСПЕРСИОННЫХ РЕНТГЕНОФЛУОРЕСЦЕНТНЫХ ИЗМЕРЕНИЙ АКТИНОИДОВ НА ОСНОВЕ МЕТОДА МОНТЕ–КАРЛО

А.Н. Берлизов*, В.И. Бойко, Д.А. Шариков, Ф. Сарли**, П. Ван Белле**, Х. Оттмар**, К. Лютзенкирчен**

Томский политехнический университет

*Международное агентство по атомной энергии, г. Вена, Австрия

**Институт трансурановых элементов, Объединенный исследовательский центр Европейской комиссии, г. Карлсруэ, Германия

E-mail: sharikov@tpu.ru

Представлены основные принципы моделирования экспериментальных спектров энергодисперсионных рентгенофлуоресцентных измерений, выполняемых с помощью гибридного денситометра по К-краю поглощения. Приведены результаты тестирования моделируемого подхода для набора сертифицированных растворов актиноидов (ториевого и уран-плутониевого образцов), количественный анализ которых выполняется в аналитических лабораториях радиохимических предприятий.

Ключевые слова:

Энергодисперсионный рентгенофлуоресцентный анализ, метод Монте-Карло, гибридный денситометр, К-край поглощения, актиноиды, растворы.

Key words:

Energy-dispersive X-ray fluorescence analysis, Monte-Carlo method, hybrid densitometer, K-absorption edge, actinides, solutions.

Введение

Энергодисперсионный рентгенофлуоресцентный (ЭДРФ) анализ широко применяется для определения элементного состава образцов в растворах на радиохимических предприятиях. В настоящее время данный метод реализован в гибридном денситометре по К-краю поглощения. Метод гибридной денситометрии также включает измерение трансмиссии фотонного излучения по К-краю поглощения определяемого элемента. Таким образом, применение двух методик обеспечивает неразрушающее определение концентраций тяжелых элементов в растворах облученного топлива на радиохимических предприятиях [1].

В предыдущей работе был разработан способ на основе метода Монте-Карло, позволяющий моделировать скорости счета в характеристических пиках полного поглощения рентгеновского излучения актиноидов [2]. В настоящей работе данный подход был расширен для случая моделирования полных спектров ЭДРФ измерений. Данная задача представляет особый интерес для тестирования работы программного обеспечения, используемого при обработке экспериментальных спектров энергодисперсионных рентгенофлуоресцентных измерений, полученных при измерениях растворов актиноидов с гибридным денситометром. Для решения этой задачи коллективом автором была создана программа HKED-RGP, которая позволяет моделировать спектры ЭДРФ измерений, выполняемых с соответствующим спектрометрическим трактом гибридного денситометра.

Функциональная схема программы включает:

 удобный и интуитивно-понятный интерфейс пользователя, который позволяет выполнять все этапы моделирования спектра: задавать параметры образца, облучающего спектра тормозного излучения рентгеновской трубки, производить описание параметров детектора, задавать параметры анализатора и генерируемого спектра;

- многофункциональную базу данных для хранения: параметров образцов и облучающего спектра тормозного излучения, параметров детектора и анализатора; спектральных распределений рентгеновской трубки, физического спектра фотонов, излученных/рассеянных образцом, функций отклика детектора и аппаратурных спектров;
- модули динамически-подключаемых библиотек, для моделирования облучающего спектра рентгеновской трубки, расчета функции отклика для заданных параметров детектора, моделирования физического спектра фотонов, излученных/рассеянных образцом, генерации аппаратурного спектра.

Принципы моделирования аппаратурных спектров

Моделирование спектра выполняется в два этапа, как представлено в работе [3].

На первом шаге моделируется физический спектр возле входного окна детектора, используя модуль на основе метода Монте-Карло из расчетного кода МСПР для моделирования переноса фотонов в произвольно-заданной геометрии. Модуль используют оптимизированные модели гибридных денситометров, детальное описание которых представлено в работе [2]. Программа HKED-RGP позволяет моделировать облучающий спектр тормозного излучения рентгеновской трубки, используя две доступные опции: первая базируется на эмпирической модели спектра тормозного излучения согласно работе [2], вторая возможность позволяет моделировать спектр в соответствии с методом Монте-Карло. Моделируемый спектр рентгеновской трубки, получаемый на первом этапе, полностью соответствует реальному физическому спектру, который образуется вследствие облучения пучком электронов анода трубки и содержит как непрерывно-распределенное фотонное излучение, так и характеристическое рентгеновское излучения вольфрамового анода рентгеновской трубки. Получаемый физический спектр содержит информацию о дискретных энергиях фотонов характеристического рентгеновского излучения, а также фотонов непрерывного распределения — континуума, который образуется вследствие некогерентного рассеяния спектра рентгеновской трубки в образце.

На втором шаге, полученный физический спектр математически «сворачивается» с матрицей отклика, которая предварительно рассчитана для параметров детектора [2], используемого в канале гибридного денситометра для ЭДРФ измерений. Для корректного моделирования формы пиков полного поглощения рентгеновского излучения актиноидов, используется модель на основе свертки Войта. При расчете формы пика на основе свертки Войта используются оценки «естественного» энергетического уширения для атомных уровней, в результате переходов с которых возникает характеристическое рентгеновское излучения элементов образца. Для обеспечения данных расчетов используются соответствующие данные из библиотеки оцененных атомных данных EADL [5]. Стоит отметить, что при моделировании инструментального спектра не учитывается ряд эффектов, возникающих, например, вследствие случайного суммирования импульсов, которое, в свою очередь, может приводить к изменению формы пиков полного поглощения в реальном спектре и при больших загрузках ведет к увеличению мертвого времени регистрирующей системы.

Совершенствование библиотеки рентгеноспектральных данных

Точность моделирования спектров энергодисперсионных рентгенофлуоресцент-ных измерений напрямую зависит от используемых справочных данных по взаимодействию фотонов с веществом и справочных рентгеноспектральных данных, используемых при расчетах физического спектра. Соответствующие библиотеки по взаимодействию фотонов с веществом – MCPLIB, MCPLIB02, MCPLIB03 и MCPLIB04, которые используются в расчетном коде МСNP, поставляются непосредственно с самой программой. Использование библиотеки MCPLIB04 выглядит наиболее привлекательным для подобных расчетов, так как данная библиотека содержит самые последние оценки сечений взаимодействия фотонов с веществом, которые изначально были взяты из библиотеки EPDL97 [6]. В то же время, рентгеноспектральные данные, представленные в данной библиотеке, имеют ряд несоответствий:

 рентгеновские линии Кβ-серии элементов представлены только двумя «эффективными» линиями Кβ'₁ и Кβ'₂, которые являются средневзвешенными значениями (M₂-K, M₃-K, M₄-K) и (N₂-K, N₃-K) переходов, соответственно. Такие оценки для энергий линий К β -серии являются довольно грубым приближением, так как при использовании детекторов с высоким энергетическим разрешением отдельные линии К β -серии в ЭДРФ спектре достаточно хорошо «разрешаются» (т. е. положение отдельных пиков, соответствующих линиям К β -серии для конкретного элемента могут быть установлены с высоким приближением);

- отсутствуют данные по линиям КО_{2,3} и КР_{2,3}, наличие которых наблюдается в самом ЭДРФ спектре;
- линии рентгеновского излучения и энергии Ккраев поглощения, представленные в библиотеке MCPLIB04, смещены в сторону больших значений (смещение составляет порядка 0,5 кэВ для энергетического диапазона рентгеновского излучения актиноидов) по сравнению с библиотеками MCPLIB, MCPLIB02, MCPLIB03 и последними оценками рентгеноспектральных данных, представленными в работах [7–9].

Первые два недостатка наблюдаются во всех версиях библиотек MCPLIB. Последний – происходит вследствие перехода от оригинальных данных, представленных в работе [10] и используемых в ранних версиях библиотек оцененных данных взаимодействия фотонного излучения с веществом, к новым данным, основанным на библиотеке EPDL97.

Для того, чтобы выявить неточность данных для значений энергий рентгеновского излучения и энергий К-краев поглощения в библиотеке оцененных данных MCPLIB04/EPDL97, было проведено экспериментальное измерение свинцовой фольги (толщиной 0,12 мм), облучаемой точечным образцовым источником гамма-излучения ¹⁰⁹Cd. Для регистрации фотонного излучения использовался стационарный спектрометр с планарным низкоэнергетическим германиевым детектором LEGe фирмы Canberra. Данное тестовое измерение базируется на том, что гамма-излучение источника ¹⁰⁹Cd с энергией E₂=88,0341 кэВ находится в узком энергетическом интервале, ограниченным двумя энергиями К-края поглощения свинца в соответствие с библиотеками MCPLIB03 (*E_k*=88,0045 кэВ) и MCPLIB04 (*E_k*=88,290 кэВ). Таким образом, если при облучении свинцовой фольги источником ¹⁰⁹Сd произойдет возбуждение характеристического рентгеновского излучения свинца, тогда значения рентгеноспектральных данных библиотеки MCN-PLIB03 являются правильными, а библиотеки MCNPLIB04 – не соответствуют действительности. Подтверждение данного предположения следует из рис. 1, на котором представлены соответствующие спектральные распределения для трех измерений: фоновое (Pb), источника кадмия (¹⁰⁹Cd) и совместного измерение свинцовой фольги и точечного источника (109Cd+Pb), которое подтверждает возбуждение рентгеновского излучения свинца.



Рис. 1. Сравнение экспериментальных спектров, демонстрирующее факт возбуждения рентгеновских линий К-серии свинца гамма-излучением с энергией 88,0341 кэВ образцового источника [№]Сd

Основываясь на полученном результате, была создана новая библиотека, содержащая данные по взаимодействию фотонов с веществом с правильными рентгеноспектральными данными для рентгеновского излучения К-серии. Для элементов с порядковым номером Z>40 в библиотеке представлены все 5 флуоресцентных линий рентгеновского излучения К*β*-серии. Также в библиотеку были включены линии КО_{2,3} и КР_{2,3} для элементов с порядковым номером Z>48 и Z>80, соответственно. Энергии рентгеновских переходов с соответствующими интенсивностями рентгеновского излучения, а также энергии К-краев поглощения взяты из [7]. Остальные атомные данные, включая сечения, вероятности возбуждения и выходы рентгеновского излучения, взяты из библиотеки EPDL97.

Результаты экспериментального тестирования

Для тестирования разработанной программы НКЕD-RGP проведен ряд ЭДРФ измерений для набора сертифицированных растворов актиноидов. Приготовление сертифицированных образцов растворов и экспериментальные измерения выполнены в Институте трансурановых элементов (г. Карлсруэ, Германия).

Образец раствора нитрата тория

Возможность моделирования спектров энергодисперсионных рентгенфолуоресцентных измерений для низкоконцентрированного образца раствора, содержащего один актиноид в матрице из азотной кислоты, была проверена для образца нитрата тория. Для измерения был приготовлен образцовый раствор нитрата тория с концентрацией тория 2,026 г/л из сертифицированного образца раствора Alfa Aesar с концентрацией 10,016 гTh/л \pm 0,2 % (*n*=2). Плотность раствора после проподготовки определена экспериментально с использованием плотнометра Anton Paar и составила 1,0641 г/мл, погрешность определения \leq 0,05 % для доверительной вероятности 95 % (*n*=2). Для обеспечения стабильности интенсивности облучающего тормозного спектрального распределения рентгеновская трубка до измерений эксплуатировалась в течение 3 ч при номинальном напряжении 145 кВ. Для моделирования спектров на основе метода Монте—Карло конечное значение облучающего спектра рентгеновской трубки (146,37 кэВ) было определено с помощью выполняемого параллельно трансмиссионного измерения по К-краю поглощения. Образец был измерен с установленным временем набора спектра 3600 с, чтобы обеспечить статистику счета, достаточную для сравнения экспериментальных и модельных спектров ЭДРФ измерений.

Сравнение экспериментального и модельного спектров представлено на рис. 2.



Рис. 2. Сравнение экспериментального и расчетного спектров для образца раствора торила с концентрацией тория 2 г/л в матрице из 2,5 М HNO₃

Модельный спектр был нормирован относительно экспериментального – по совпадению значений интенсивности в пике полного поглощения Kb?₁ рентгеновского излучения тория. Сравнение спектральных распределений, рис. 3, явно указывает на необходимость включения линий KO_{2,3} и KP_{2,3} рентгеновского излучения актиноидов в библиотеку оцененных атомных и рентгеноспектральных данных для моделирования спектра на основе метода Монте–Карло.



Рис. 3. Сравнение экспериментальных и модельных спектров для линий Кβ-серии рентгеновского излучения тория в энергетической области 100...112 кэВ

Согласно рис. 2 и 3 для расчетного и экспериментального спектров наблюдается достаточно хорошее соответствие во всем энергетическом диапазоне.

Различие спектральных распределений числа отсчетов в области 20...60 кэВ и в области свыше 110 кэВ объясняется влиянием эффекта случайного суммирования. В гибридном денситометре используется источник ¹⁰⁹Cd. Контролирование позиции пиков полного поглощения характеристического излучения источника осуществляется для стабилизации спектрометрического тракта гибридного денситометра. Это позволяет определять энергетическое разрешение полупроводникового детектора. Так как активность источника ¹⁰⁹Cd не была известна с достаточной точностью, то данный источник не учитывался при моделировании спектра.

Сравнение спектров, рис. 3, также указывает на то, что энергетическое разрешение пиков $K\beta_1$ и $K\beta_3$ рентгеновского излучения тория для экспериментального спектра значительно лучше, чем для расчетного спектра, что, в свою очередь, может объясняться неточными значениями «внутренних» ширин указанных линий рентгеновского излучения тория в библиотеке EADL.

Образец смешанного раствора урана и плутония в матрице из азотной кислоты

Необходимость ЭДРФ измерений смешанных уран-плутониевых растворов на радиохимических предприятиях обусловлена необходимостью технологического контроля процессов переработки облученного топлива, а также необходимостью производить учет и контроль инвентарного количества ЯМ на данном производстве. Для тестирования результатов моделирования методом Монте-Карло использовался образцовый уран-плутониевый раствор. Элементные концентрации актиноидов были определены на основе метода массспектрометрии с изотопным окончанием. Плотность раствора определена экспериментально (плотнометр Anton Paar) и составила 1,62304 г/мл; погрешность определения ≤0,05 % для доверительной вероятности 95 % (*n*=2). Для ЭДРФ измерения рентгеновская трубка использовалась в стационарном режиме: номинальное напряжение – 150 кВ, ток трубки – 10 мА. Номинальное время измерения образца составляло 2000 с. Конечное значение тормозного спектра рентгеновской трубки контролировалось с помощью трансмиссионного измерения по К-краю поглощения.

Сравнение экспериментального и модельного распределений представлено на рис. 4. Для измерения данного образца также наблюдается влияние эффекта случайного суммирования импульсов, что объясняет различие спектральных распределений в низкоэнергетическом диапазоне 20...60 кэВ и в высокоэнергетическом – свыше 118 кэВ. Для нормировки спектров использовалась линия $K\beta_1$ рентгеновского излучения урана, рис. 5. Линии $KO_{2,3}$ и $KP_{2,3}$ рентгеновского излучения урана и плутония также отчетливо разрешаются в спектре.



Рис. 4. Сравнение экспериментального и модельного спектров для образца раствора, содержащего 226 гU/л и 22 гРu/л в матрице из 11,8 М HNO₃



Рис. 5. Сравнение экспериментального и модельного спектров в энергетическом диапазоне 108...124 кэВ

Сравнение спектров, рис. 5, указывает на необходимость уточнения значений «внутренних» ширин для линий $K\beta_1$ и $K\beta_3$ рентгеновского излучении урана и плутония в библиотеке EADL, т. к. наблюдается различие в форме пиков полного поглощения $K\beta_1$ и $K\beta_3$ соответствующего рентгеновского излучения актиноидов.

Заключение

Разработана программа HKED-RGP, позволяющая моделировать полные спектры энергодисперсионных рентгенофлуоресцентных измерений. Подход, используемый для моделирования, основан на методе Монте-Карло и не требует предварительных калибровочных данных. Для того, чтобы обеспечить реалистичное моделирование пиков полного поглощения рентгеновского излучения актиноидов, создана библиотека, включающая рентгеноспектральные данные и данные по взаимодействию фотонного излучения с веществом. Программа HKED-RGP позволяет с высокой точностью моделировать спектры энергодисперсионных рентгенофлуоресцентных измерений: наблюдается согласие интенсивностей пиков полного поглощения рентгеновского излучения и формы спектрального континуума с экспериментальными данными.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- Ottmar H., Eberle H., Daures P., et al. Dedicated K-Edge/XRF Instrumentations for Euratom Safeguards – A Review of Present and Future Applications // Proc. 19th Annual ESARDA Symp. – Montpellier, France. – May 13–15, 1997. – Montpellier, 1997. – P. 211–219.
- Berlizov A.N., Sharikov D.A., Ottmar H., Eberle H., Galy J., Luetzenkirchen K. A quantitative Monte-Carlo modelling of the uranium and plutonium X-ray fluorescence (XRF) response from a hybrid K-edge/K-XRF densitometer // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section A. – 2010. – V. 615. – № 1. – P. 127–135.
- Berlizov A.N., Dreher R. Web-Accessible Gamma-Spectrum Simulator with On-Line Monte-Carlo for Voluminous and Shielded Gamma-Sources: First Results of Experimental Validation // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section A. 2009. V. 609. № 1. P. 19–23.
- Briesmeister J.F. MCNP a general Monte Carlo N-particle transport code. – LA-12626-M. – Los Alamos, 1997. – 741 p.
- Perkins S.T., Cullen D.E. ENDL Type Formats for the LLNL Evaluated Atomic Data Library (EADL), Evaluated Electron Data Library (EEDL), and Evaluated Photon Data Library (EPDL) // OECD NEA Evaluated Nuclear Reaction Data. 2012. URL:

http://www-nds.iaea.org/epdl97/document/endl.pdf (дата обращения: 10.02.2012).

- Cullen D.E., Hubbel J.H., Kissel L.D. EPDL97: The Evaluated Photon Data Library, '97 Version, UCRL-50400, Vol. 6, Rev. 5, 1997 // IAEA Nuclear Data Services. 2012. URL: http://www-nds.iaea.org/epdl97/document/epdl97.pdf (дата обращения: 10.02.2012).
- Firestone R. Table of Isotopes, 8th edition, Vers. 1.0, New York: Wiley-InterScience, 1996. [Электронный ресурс]. – 1 электрон. опт. диск (CD-ROM).
- Deslattes R.D., Kessler E.G. Jr., Indelicato P., de Billy L., Lindroth E., Anton J. X-ray transition energies: new approach to a comprehensive evaluation // Reviews of Modern Physics. 2003. V. 75. № 1. P. 35–99.
- Brunetti A., Sanchez de Rio M., Golosio B., Simionovici A., Somogyi A. A library for X-ray-matter interaction cross sections for X-ray fluorescence applications // Spectrochimica Acta B. – 2004. – V. 59. – № 10–11. – P. 1725–1731.
- Storm E., Israel H.I., Photon cross sections from 1 keV to 100 MeV for elements Z=1 to Z=100 // Nuclear Data Tables. – 1970. – V. 6. – № 7. – P. 565–688.

Поступила 24.04.2012 г.

УДК 620.179.15

ОЦЕНКА ЭФФЕКТИВНОСТИ ИСПОЛЬЗОВАНИЯ ДЕТЕКТОРОВ С НЕОДНОРОДНОЙ ПРОСТРАНСТВЕННОЙ ЧУВСТВИТЕЛЬНОСТЬЮ В СКАНИРУЮЩИХ СИСТЕМАХ ЦИФРОВОЙ РЕНТГЕНОГРАФИИ

В.А. Удод*, В.И. Солодушкин, В.А. Клименов, А.К. Темник

*Томский государственный университет Томский политехнический университет E-mail: udod@ef.tsu.ru

Для сканирующих систем цифровой рентгенографии, содержащих линейку детекторов с неоднородной (экспоненциальной) пространственной чувствительностью по направлению сканирования, решена задача оптимального выбора длины апертуры и параметра неоднородности пространственной чувствительности отдельного детектора из линейки, времени регистрации излучения и импульсного отклика цифрового фильтра. Критерием оптимальности служил максимум пространственной разрешающей способности системы по направлению сканирования. По результатам решения оптимизационной задачи оценена эффективность использования в данных системах детекторов с неоднородной (экспоненциальной) чувствительностью.

Ключевые слова:

Цифровая рентгенография, сканирующая система, детектор, неоднородная пространственная чувствительность, пространственная разрешающая способность.

Key words:

Digital radiography, scanning system, detector, inhomogeneous spatial sensitivity, spatial resolution.

Введение

Среди различных типов систем цифровой рентгенографии (на основе оцифровки традиционных рентгенограмм, усилителей радиационных изображений, запоминающих люминофоров и т. д. [1–6]) одними из наиболее перспективных являются сканирующие системы цифровой рентгенографии (ССЦР) на основе линейки детекторов [1–3]. Их принцип действия, согласно [3, 4, 7], состоит в следующем. Узкий (за счет щелевой коллимации источника) веерный пучок рентгеновского (фотонного) излучения, проходя через объект контроля (OK), облучает коллимированную линейку детекторов, сигналы каждого из которых усиливаются и предварительно обрабатываются (интегрируются либо пересчитываются и т. п.), а затем поступают через аналого-цифровые преобразователи в компьютер, где они нормализуются и хранятся, формируя тем самым соответствующую строку отсчетов радиационного изображения просвечиваемого OK. Затем эти отсчеты визуализируются на экране дисплея, образуя строку полутонового изображения. Полное полутоновое изображение формируется путем однократного сканирования OK гори-