

МОДЕЛИРОВАНИЕ ЭНЕРГЕТИЧЕСКИХ СПЕКТРОВ ГАММА-ИЗЛУЧЕНИЯ ПЕРСПЕКТИВНЫХ РАДИАЦИОННО-ТЕХНОЛОГИЧЕСКИХ ИСТОЧНИКОВ НА ОСНОВЕ ИЗОТОПОВ ЕВРОПИЯ

С.В. Дюльдя, М.И. Братченко, М.А. Скоробогатов

Научно-производственный комплекс

“Возобновляемые источники энергии и ресурсосберегающие технологии”

ННЦ “Харьковский физико-технический институт”

Путем математического моделирования методом Монте-Карло детально исследованы эффективные гамма-спектры реалистических моделей мощных источников гамма-излучения на базе радионуклидов европия. Изучены физические механизмы формирования эффективных спектров, которые заключаются в зависящем от энергии фотонов ослаблении первичного излучения и генерации рассеянного и вторичного излучения и приводят к увеличению жесткости гамма-излучения источника. Исследована зависимость характеристик спектров излучения европиевых гамма-источников от параметров их конструкции и выработаны рекомендации по ее оптимизации.

ВВЕДЕНИЕ

Радионуклиды европия предлагаются [1, 2] к использованию в мощных источниках гамма-излучения для промышленных гамма-радиационных технологий как экономически эффективная альтернатива радионуклидам кобальта-60 и цезия-137, которые широко применяются в настоящее время.

Применение нового типа радионуклидов в источниках гамма-излучения требует детального физического обоснования, которое также должно послужить основой для оптимизации конструкций новых источников. В настоящей работе в этих целях использован подход, основанный на математическом моделировании радиационных параметров европиевых гамма-источников методом Монте-Карло.

Наиболее полная информация о таких параметрах содержится в энергетических спектрах излучения изотопных источников. Именно спектр излучения определяет такие важные с точки зрения радиационно-технологических применений и проектирования радиационных защит характеристики, как проникающая способность излучения и его потери в материалах источника. Другие важные параметры (мощность поглощенной дозы в обрабатываемых продуктах, коэффициенты самопоглощения излучения источником) могут быть найдены с помощью интегрирования соответствующих вкладов по всему спектру излучения.

При ядерном распаде долгоживущих радионуклидов европия ^{152}Eu , ^{154}Eu и ^{155}Eu в отличие от близкого к моноэнергетическому излучения нуклидов ^{60}Co и ^{137}Cs испускаются гамма-кванты со сложными широкими энергетическими спектрами. Эти спектры представляют собой идеальный «теоретический предел» спектров излучения реальных источников. В таких источниках взаимодействие испускаемых фотонов с материалами активной части и технологическими оболочками (капсулами) приводит к поглощению и рассеянию фотонов, а также к генерации вторичного излучения с собственным спектром, определяемым законами электромагнитных взаимодействий. Поскольку вероятности всех этих процес-

сов существенно зависят от энергии фотона, энергетическое распределение испускаемых источником гамма-квантов, вообще говоря, отличается от энергетического спектра излучения нуклидов при ядерном распаде и становится сложной функцией геометрии и материалов источника. В результате формируется эффективный гамма-спектр источника, специфичный для его конструкции.

Различие между идеальными спектрами распада и эффективными спектрами источника может рассматриваться как количественная характеристика степени оптимальности его конструкции. Моделирование и сравнительный анализ эффективных гамма-спектров различных конструкций источников на базе изотопов европия и представляет собой основное содержание настоящего исследования.

1. КОМПЬЮТЕРНАЯ МОДЕЛЬ

В данной работе для моделирования использовалась разработанная нами программа *RaT*, основанная на библиотеке классов *Geant4* [3] моделирования транспорта излучения в веществе методом Монте-Карло. При моделировании транспорта фотонов учитывались фотопоглощение, некогерентное комптоновское рассеяние и рождение электрон-позитронных пар. Моделирование транспорта заряженных частиц учитывало упругое рассеяние и ионизационное торможение, многократное рассеяние и тормозное излучение, рождение δ -электронов и аннигиляцию позитронов. Данные по сечениям элементарных процессов электромагнитных взаимодействий соответствовали так называемой «стандартной модели» этих процессов [3], реализованной в библиотеке *Geant4* версии 5.0.

1.1. РАССЧИТЫВАЕМЫЕ ВЕЛИЧИНЫ

Гамма-спектры излучения радионуклидов определяются как энергетические распределения абсолютной интенсивности (или вероятности) излучения фотона, приходящейся на один распад ядра. Экспериментально они могут быть измерены только по отклику детектора (например,

полупроводникового), чувствительного к таким характеристиками, как выделенная в его объеме энергия или поглощенная доза или керма фотонного излучения. Абсолютные значения всех этих величин зависят от активности источника, геометрии детектора и его положения относительно источника. Все они определяются потоком энергии излучения, усредненным по объему чувствительной области детектора.

Основной физической величиной, непосредственно подсчитываемой программой *RaT* для каждого типа частиц, является F_E – плотность потока энергии. В каждом детекторе эта величина, усредненная по N историям транспорта первичных частиц, вычисляется программой по формуле:

$$F_E = \frac{A}{N \cdot \Delta V} \sum_{i=1}^N E_i \cdot \Delta l_i \quad (1)$$

где A – активность источника, измеряемая в распадах в единицу времени (активность в 1 Ки отвечает $3,7 \cdot 10^{10}$ распадов в сек.); E_i и Δl_i – энергия и длина трека i -ой частицы в детекторе объема ΔV . Величина F_E измеряется в МэВ·см⁻²·с⁻¹.

Частицы, пересекающие детектор, могут иметь широкое распределение по энергиям, покрывающее область от энергии обрезания транспорта фотонов $E_{мин} \sim 10$ кэВ до максимальной энергии $E_{макс}$ исходного гамма-спектра (для радионуклидов европия $E_{макс} \approx 1,6$ МэВ). Для расчета спектра плотности потока энергии частиц $I_E(E)$ весь интервал энергий фотонов ($E_{мин}$, $E_{макс}$) разбивается на большое число энергетических каналов шириной ΔE , и программа подсчитывает $I_E(E)$ в каждом таком канале в соответствии со следующей формулой:

$$I_E(E) = \frac{A}{N \cdot \Delta V \cdot \Delta E} \times \sum_i E_i \Delta l_i H\left(E_i - E + \frac{\Delta E}{2}\right) H\left(E + \frac{\Delta E}{2} - E_i\right), \quad (2)$$

где $H(x)$ – функция Хевисайда: $H(x) = 1$ при $x > 0$, иначе $H(x) = 0$. Энергетический спектр $I_E(E)$ плотности потока энергии излучения измеряется в см⁻²·с⁻¹.

Во всех расчетах настоящей работы для гистограммирования спектров использовались каналы шириной $\Delta E = 10$ кэВ, достаточной для воспроизведения тонких деталей спектра и сопоставимой с энергетическим разрешением реальных детекторов.

Интеграл от $I_E(E)$ по энергии в пределах от $E_{мин}$ до $E_{макс}$ равен F_E – полной плотности потока энергии в детекторе. Поэтому можно ввести нормированный энергетический спектр

$$I_E^*(E) = I_E(E) / F_E, \quad (3)$$

который не зависит от абсолютной величины F_E и характеризует только форму спектра.

Другие представляющие интерес энергетические зависимости могут быть легко получены из спектров $I_E(E)$ плотности потока энергии. Так, распределение плотности потока фотонов $I(E)$, измеряемое в МэВ⁻¹·см⁻²·с⁻¹, выражается следующей формулой:

$$I(E) = \frac{1}{E} \cdot I_E(E), \quad (4)$$

а нормированное распределение

$$I^*(E) = n_\phi \cdot I(E) \cdot \left[\int_{E_{мин}}^{E_{макс}} I(E) dE \right]^{-1}, \quad (5)$$

измеряемое в фотонах на распад, может быть прямо сравнено с данными исходных гамма-спектров распада радионуклидов (здесь n_ϕ – полное число фотонов, приходящееся на один распад).

Керма K фотонного излучения в воздухе, являющаяся мерой полной интенсивности излучения источника, также может быть охарактеризована соответствующим энергетическим распределением $I_K(E)$, описывающим вклады фотонов различных энергий в полную керму излучения в воздухоэквивалентном детекторе. Энергетический спектр кермы в воздухе можно рассчитать по формуле:

$$I_K(E) = 1,602 \cdot 10^{-10} \cdot \frac{\mu_n(E)}{\rho} \cdot I_E(E) = K \cdot I_K^*(E), \quad (6)$$

где ρ – плотность воздуха, μ_n/ρ – массовый коэффициент поглощения энергии фотонов (для всех материалов программа *RaT* рассчитывает $\mu_n(E)/\rho$ по данным работы [4], ориентированной на критичные по точности медико-физические приложения).

В формуле (6) мы ввели также нормированный спектр $I_K^*(E)$ кермы в воздухе, который характеризует форму энергетического распределения. Соответствующая интегральная функция распределения

$$I_K^{**}(E) = \int_{E_{мин}}^E I_K^*(E') dE'. \quad (7)$$

описывает кумулятивный относительный вклад фотонов с энергиями, меньшими E , в полную керму K .

При моделировании рассчитывались все указанные выше величины, однако большинство результатов далее приводятся для спектров плотности потока энергии фотонов $I_E(E)$ как для наиболее фундаментальной характеристики гамма-спектров источников. Все распределения систематически нормировались на полную активность источника излучения.

1.2. МОДЕЛИ ГАММА-ИСТОЧНИКОВ

Источники гамма-излучения на базе изотопов европия для замещения отработавших срок эксплуатации кобальтовых источников, очевидно, должны совпадать с этими источниками по габаритам и основным конструктивным элементам, что обеспечит загрузку европиевых источников в излучатели существующих гамма-установок. Изготовление таких источников предполагает краткосрочное нейтронное реакторное облучение природного европия для наработки гамма-активных радионуклидов ¹⁵²Eu, ¹⁵⁴Eu и ¹⁵⁵Eu с достаточной активностью.

Вместе с тем значительный интерес и экономические преимущества с точки зрения ряда радиационно-технологических применений источников на базе изотопов европия представляет возможность

непосредственного использования в источниках излучения высокоактивного европия из поглощающих элементов (ПЭЛ) выведенных из эксплуатации стержней регулирования исследовательских и энергетических реакторов [1,2]. Такие источники, разрабатываемые в настоящее время в ГНЦ РФ НИИАР, могут заметно отличаться по геометрии и конструкции от типичных промышленных гамма-источников, и поэтому задача предсказания их эффективных гамма-спектров приобретает особое значение.

Модели источников, рассматриваемые в настоящей работе, соответствуют использованию в качестве активного материала источника оксида европия Eu_2O_3 из поглощающих элементов энергетического реактора БН-600 Белоярской АЭС и основываются на характеристиках стержней регулирования БН-600, приведенных в главе 6 монографии [2].

Моделировались два варианта источников цилиндрической симметрии (см. рис. 1) с двойной инкапсуляцией активного материала, принятой в конструкциях промышленных закрытых гамма-источников. Оба эти варианта включали в себя цилиндрические активные сердечники длиной 790 мм и диаметром 8,5 мм, состоящие из оксида европия с плотностью $4,6 \text{ г/см}^3$. Они были заключены в стальную цилиндрическую внутреннюю оболочку длиной 845 и толщиной стенки 0,5 мм так, что внешний диаметр внутренней капсулы составлял 9,5 мм. Длина внешней стальной оболочки в обоих вариантах составляла 900 мм, однако ее поперечные размеры и наполнение существенно различались в двух вариантах конструкции. Поскольку по габаритам эти два варианта сильно отличаются диаметрами внешних оболочек, мы будем далее для краткости называть их *тонким* и *толстым* источниками.

В варианте тонкого источника (рис. 1,а) в оболочке с внешним диаметром 12 и толщиной стенки 1 мм коаксиально располагался один описанный выше активный элемент. В варианте толстого источника (рис. 1,б) 17 таких элементов располагались с осевой симметрией вдоль окружности радиусом 35,75 внутри оболочки с внешним диаметром 90 мм. Толщина d стенки внешней оболочки при моделировании рассматривалась как параметр оптимизации конструкции источника и в разных расчетах варьировалась от 3 до 1,5 мм. В направлении оси источника все элементы моделей располагались симметрично относительно середины внешней оболочки.



Рис. 1. Трехмерные компьютерные модели двух вариантов конструкции гамма-источников на базе изотопов европия: тонкий источник (а) и толстый составной источник (б)

В качестве материала всех оболочек была принята нержавеющая сталь 08X18H10T с плотностью $7,9 \text{ г/см}^3$. Расчеты показали, что вариации элементного состава в зависимости от марки стали (ЭИ-847, 12X18H10T) не оказывают заметного влияния на радиационные параметры источника.

Распределение активности по объему сердечников из оксида европия считалось равномерным. Все расчеты были проведены для фиксированного изотопного состава активных сердечников: они содержали 47% радионуклида ^{152}Eu , 51% радионуклида ^{154}Eu и 2% радионуклида ^{155}Eu . Такой изотопный состав достаточно представительен, поскольку основные долгоживущие нуклиды европия ^{152}Eu и ^{154}Eu по данным работы [2] нарабатываются при реакторном облучении в сопоставимых количествах и имеют тенденцию к выравниванию изотопного содержания в процессе распада, а нуклид ^{155}Eu , отличающийся мягким спектром фотонов и меньшим периодом полураспада, не является перспективным для использования в промышленных гамма-источниках.

При моделировании использовались рекомендованные МАГАТЭ гамма-спектры радионуклидов ^{152}Eu и ^{154}Eu [5] и спектр гамма-излучения нуклида ^{155}Eu из банка ядерных данных программы *NuDat* [6] (версия для персональных компьютеров с базой данных от 10.03.2002). Соответствующие дискретные спектры гамма-квантов и распределения энергии гамма-излучения для использованной смеси радионуклидов европия изображены на рис. 2. Они представляют собой результат объединения спектральных линий, интенсивности которых взвешены в соответствии с концентрацией нуклидов европия в рассматриваемой смеси.

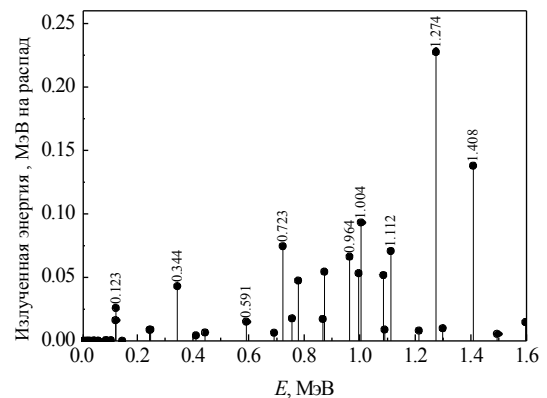
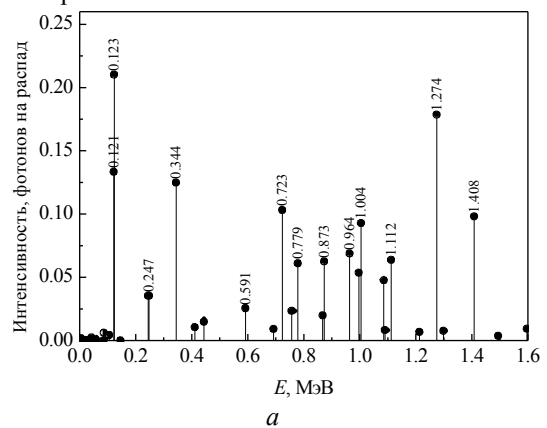


Рис. 2. Спектры фотонов (а) и излученной энергии (б) гамма-излучения, образующегося при ядерном распаде смеси радионуклидов европия с выбранным изотопным составом. Указаны энергии некоторых наиболее интенсивных спектральных линий

Полное число фотонов, испускаемых такой смесью в расчете на один акт распада, составляет $n_{\phi} = 1,52$, а полная излучаемая при распаде энергия равна 1,09 МэВ при средней энергии фотона $\langle E \rangle = 713$ кэВ.

Как видно, в отличие от почти моноэнергетических спектров излучения радионуклидов ^{60}Co и ^{137}Cs спектры гамма-излучения смеси радионуклидов европия весьма сложны и содержат интенсивные спектральные линии во всем диапазоне энергий. Однако в распределении энергии излучения выделяются две линии – 1,274 МэВ нуклида ^{154}Eu и 1,408 МэВ нуклида ^{152}Eu . Оказывается, что около 40% излученной энергии приходится на гамма-кванты, превосходящие по энергии среднюю энергию 1,25 МэВ близко расположенных линий излучения изотопа ^{60}Co .

1.3. ГЕОМЕТРИЯ ДЕТЕКТИРОВАНИЯ СПЕКТРОВ

Поскольку радиационные поля обоих вариантов конструкции гамма-источников с высокой точностью обладают аксиальной симметрией относительно оси источника, моделирование измерения спектров производилось для кольцевого детектора, изображенного на рис. 3. Детектор представлял собой цилиндрический слой с внутренним радиусом 95 см и внешним радиусом 105 см. По вертикали детектор располагался симметрично относительно концов источника. Такая геометрия отвечает типичным условиям калибровочных измерений интенсивности излучения цилиндрических гамма-источников на расстоянии 1 м от их оси.

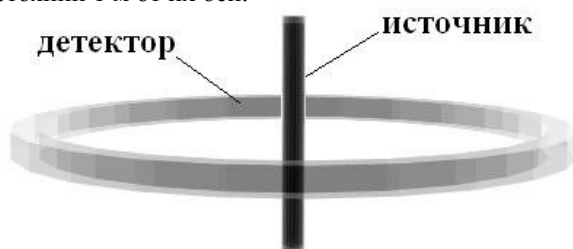


Рис. 3. Кольцевой детектор, в котором производилось накопление данных по эффективным спектрам излучения цилиндрических источников

Радиальная толщина и вертикальный размер детекторного кольца составляли 10 см, что было выбрано исходя из компромисса между требованием постоянства радиационного поля в детекторе и необходимостью накопления достаточной статистики событий в нем за разумные времена моделирования (в наших расчетах моделировалось около $5 \cdot 10^8$ историй первичных фотонов на один расчет, что обеспечило приемлемую статистическую погрешность во всей спектральной области).

Детектор, все пространство вокруг источников и

свободный объем внутри них заполнялись стандартным воздухом с плотностью $1,20479 \cdot 10^{-3}$ г/см³.

Для верификации модели и метода моделирования мы использовали предоставляемые программой *RaT* возможности произвольного задания материалов, из которых состоят элементы трехмерных моделей. Наряду с описанными выше реалистическими моделями источников мы использовали модели с теми же геометриями и исходными спектрами излучения, но с заменой реальных материалов на окружающий источник воздух.

Такие “идеальные” источники, при сохранении всех геометрических факторов, характеризуются пренебрежимо малым самопоглощением и представляют собой предельный случай, на фоне которого можно проследить влияние компонентов реальных источников на спектры их гамма-излучения.

Моделирование показало, что в выбранном детекторе, достаточно удаленном от источника, спектры излучения для двух вариантов геометрии идеального источника практически не отличаются и совпадают с данными моделирования для линейного источника той же длины.

Результаты сравнения рассчитанного по формуле (5) спектра фотонов идеального источника с данными рис. 2,а по спектру гамма-излучения смеси нуклидов изображены на рис. 4.

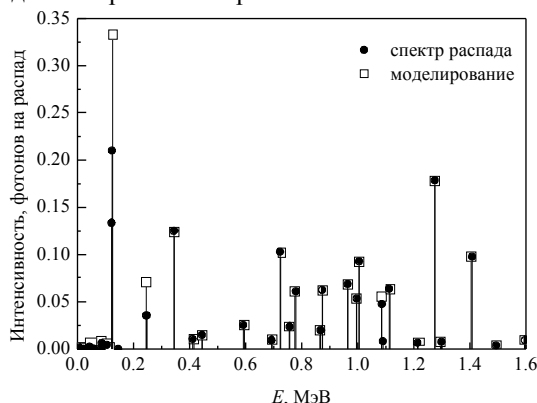


Рис. 4. Сравнение результатов моделирования спектра излучения идеального источника с исходным спектром излучения смеси радионуклидов европия

Согласие, достигнутое на рис. 4, можно признать очень хорошим, если отметить, что отличия при некоторых энергиях являются артефактами, порожденными конечным энергетическим разрешением $\Delta E = 10$ кэВ моделирования: близкие спектральные линии (как, например, 121 и 123 кэВ) при моделировании дают вклад в один и тот же энергетический канал. При сложении интенсивностей таких линий эти артефакты полностью устраняются.

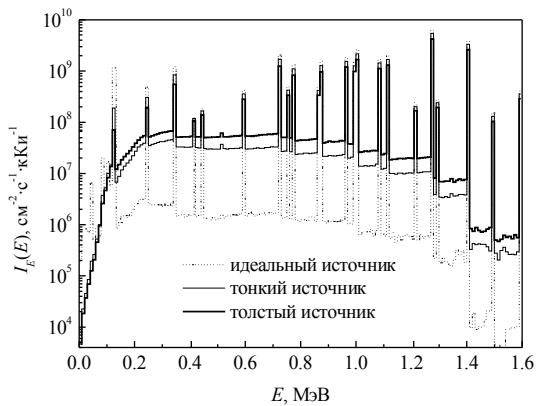
2. РЕЗУЛЬТАТЫ МОДЕЛИРОВАНИЯ

На рис. 5 приведены данные моделирования различных типов энергетических спектров для европейских источников различных конструкций в сравнении со спектрами идеального источника без самопоглощения. Для модели толстого источника (см. рис. 1б) внешняя оболочка в этих расчетах имела

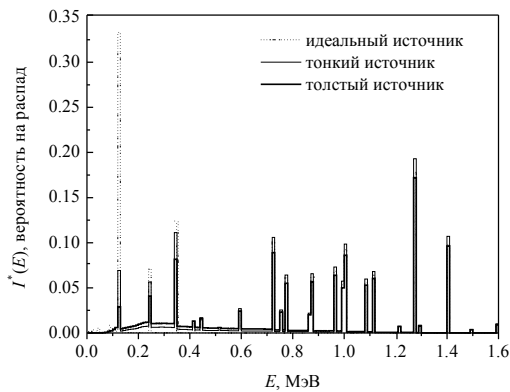
толщину $d = 3$ мм.

В этом разделе мы ограничимся качественным анализом результатов моделирования; детальные количественные оценки будут проведены далее.

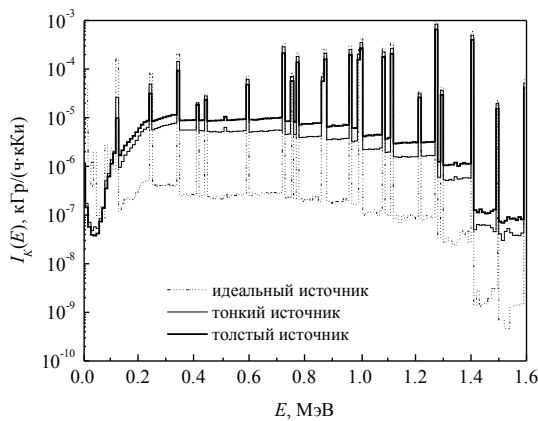
Эффективные спектры излучения для обоих рассмотренных вариантов конструкции источника сохраняют основные черты исходного спектра гамма-излучения радионуклидов европия, что выражается в присутствии на рис. 5 всех основных спектральных линий из спектров рис. 2. Влияние конструкции источника выражается в относительно малом возмущении исходного спектра. Качественно оно выражается в двух основных эффектах — ослаблении интенсивности первичных спектральных линий и появлении заметного фона рассеянных и вторичных фотонов. Первый эффект особенно сильно проявляется в низкоэнергетической области спектра, второй характерен для всей области энергий.



а



б



в

Рис. 5. Результаты моделирования спектров плотности потока энергии фотонов (а), нормированных спектров фотонов (б) и спектров мощности кермы фотонного излучения в воздухе (в) для идеального источника без самопоглощения и двух вариантов конструкции источников на базе изотопов европия

Величины обоих эффектов для каждой энергии зависят от конструкции источника. Из рис. 5,а видно, что в толстом источнике первичные фотоны ослабятся сильнее, чем в тонком. Уровень интенсивности рассеянных и вторичных фотонов, напротив, для тонкого источника ниже, чем для толстого.

Некоторая плотность потока энергии рассеянных фотонов присутствует и в модели идеального источника (рассеяние фотонов в воздухе мало, но вполне заметно). Уровень фона в этом случае примерно на три порядка ниже уровня интенсивности первичных линий спектра. Для реальных источников уровень фона резко возрастает, однако остается в 20 и более раз меньшим, нежели характерная интенсивность первичного излучения.

Нормированные спектры $I^*(E)$ плотности потока фотонов позволяют проанализировать изменение формы эффективных спектров источников в сравнении с исходным спектром излучения при распаде радионуклидов. На рис. 5,б можно заметить, что для достаточно жестких фотонов нормированная интенсивность излучения тонкого источника даже превышает интенсивность линий исходного спектра (другими словами, в расчете на один распад доля таких фотонов в излучении реального источника больше их доли в исходном спектре, хотя их абсолютное число, разумеется, меньше из-за поглощения в материалах источника). Это означает, что взаимодействие излучения с материалами источника изменяет форму исходного спектра в сторону увеличения статистического веса жестких фотонов — имеет место эффект увеличения жесткости излучения.

Спектры $I_K(E)$ мощности кермы в воздухе подобны спектрам $I_E(E)$ плотности потока энергии (в этом можно убедиться, сравнивая рис. 5,в и рис. 5,а). Это следует из формулы (6), если принять во внимание, что массовый коэффициент поглощения энергии фотонов в воздухе (μ_m/ρ) в рассматриваемой области энергий ($E > 50$ кэВ) слабо зависит от энергии [4].

Вклады фотонов с различными энергиями в полную мощность кермы излучения источника имеют тенденцию возрастать с ростом энергии фотонов. На рис. 5,в прослеживаются максимальные вклады двух спектральных линий с энергиями 1,274 МэВ и 1,408 МэВ, близкие по величине вклады множества линий в интервале $E = 700 \dots 1100$ кэВ, и незначительный вклад низкоэнергетических первичных фотонов ($E < 200$ кэВ), близкий по уровню к вкладам рассеянных и вторичных фотонов.

Сильная неравноценность вкладов различных областей спектра в мощность кермы источника иллюстрируется расчетами кумулятивной функции распределения $I_K^{**}(E)$ по формуле (7). Результаты расчетов приведены на рис. 6 и демонстрируют посте-

пенное накопление мощности кермы с ростом максимальной энергии учитываемых в расчете фотонов.

Из приведенных на рис. 6 кривых видно, что для всех конструкций источников примерно половина мощности кермы производится жесткими фотонами с энергиями, превышающими 1 МэВ.

Видно также, что скорости роста накопления мощности кермы с ростом энергии E различны для источников различных конструкций. Мягкие фотоны ($E < 200$ кэВ) дают малый (менее 10%), но заметный вклад только для идеального источника без самопоглощения; для реальных источников такие фотоны практически полностью теряются в источнике. Для более высоких энергий скорость накопления мощности кермы выше для толстого источника, нежели для тонкого (причина состоит в более значительном вкладе фотонов, рассеянных в конструкционных материалах, для более сложного и массивного толстого источника). Однако это касается только скорости накопления; абсолютная величина мощности кермы источника в расчете на единицу его активности для толстого источника всегда меньше, чем для тонкого (см. рис. 5,в).

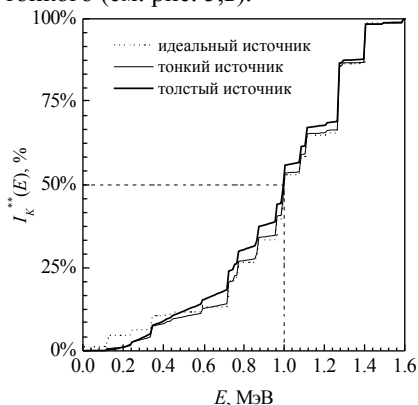


Рис. 6. Кумулятивный относительный вклад фотонов с энергиями, меньшими E , в полную мощность кермы излучения европиевых гамма-источников различных конструкций

3. МЕХАНИЗМЫ ФОРМИРОВАНИЯ ЭФФЕКТИВНЫХ ГАММА-СПЕКТРОВ ЕВРОПИЕВЫХ ИСТОЧНИКОВ

3.1. ХАРАКТЕРИСТИКИ ВЗАИМОДЕЙСТВИЯ ГАММА-ИЗЛУЧЕНИЯ С МАТЕРИАЛАМИ ИСТОЧНИКОВ

Основной закон ослабления интенсивности I первичных фотонов с энергией E на длине пути l их прохождения через однородный материал имеет вид простой экспоненциальной зависимости:

$$I(l; E) = I_0(0; E) \cdot \exp[-\mu(E) \cdot l], \quad (8)$$

где $\mu(E)$, см^{-1} , есть линейный коэффициент ослабления излучения в материале. Для материала с плотностью ρ он связан с табулированными значениями [4] массового коэффициента ослабления (μ/ρ) , $\text{см}^2/\text{г}$, тривиальным соотношением $\mu(E) = \rho[\mu(E)/\rho]$. Обратная величина $\lambda(E) = \mu^{-1}(E)$ имеет физический

смысл длины свободного пробега фотона с энергией E до акта взаимодействия с материалом.

В области энергий гамма-излучения радионуклидов европия основной вклад в ослабление потока фотонов дают процессы их поглощения (фотоэффект), некогерентного рассеяния (эффект Комптона) и гамма-конверсии (рождения электрон-позитронных пар). Полный коэффициент ослабления $\mu(E)$ складывается из вкладов этих процессов:

$$\mu(E) = \mu_{\phi}(E) + \mu_{\text{К}}(E) + \mu_{\text{нар}}(E), \quad (9)$$

где μ_{ϕ} , $\mu_{\text{К}}$ и $\mu_{\text{нар}}$ – парциальные линейные коэффициенты ослабления для процессов фотопоглощения, комптоновского рассеяния и рождения пар.

Относительные вклады этих трех видов взаимодействия существенно зависят от энергии E фотонов. Это видно из приведенных на рис. 7 результатов их расчетов по стандартным данным работы [4].

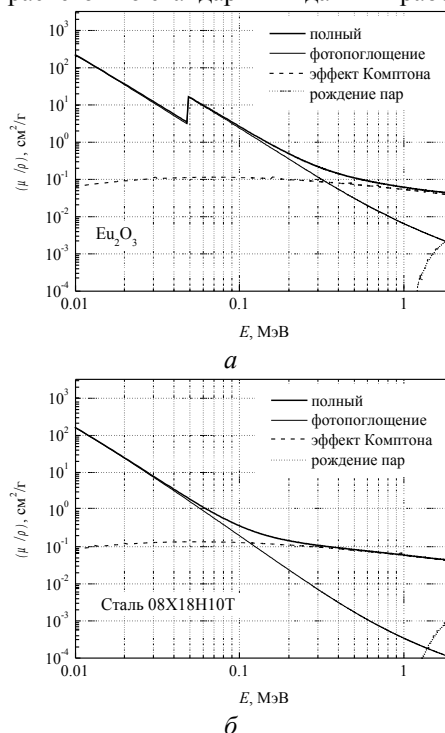


Рис. 7. Энергетические зависимости массовых коэффициентов ослабления фотонов в материале активного сердечника европиевых гамма-источников, оксиде европия Eu_2O_3 , (а) и материале оболочек источника, стали 08X18H10T

Из данных рис. 7 можно заключить, что в рассматриваемой области энергий процессы рождения пар являются малосущественными для обоих материалов, и их вкладом $\mu_{\text{нар}}(E)$ в формуле (9) можно пренебречь (даже для наиболее жестких линий спектра относительный вклад рождения пар не превышает 3% для оксида европия и 1,1% для стали).

Другие процессы, фотопоглощение и комптоновское рассеяние, в рассматриваемой области энергий являются конкурирующими. При высоких энергиях доминирует эффект Комптона, причем $\mu_{\text{К}}(E)$ слабо зависит от энергии. Напротив, фотопоглощение доминирует при низких энергиях, однако $\mu_{\phi}(E)$

резко падает с ростом энергии фотона.

Фотопоглощение более существенно в оксиде европия, материале с большим эффективным атомным номером (при энергии 121 кэВ относительный вклад фотопоглощения в Eu_2O_3 составляет около 88%, тогда как в стали он более чем вдвое меньше — 42%). Вклады фотопоглощения и комптоновского рассеяния в Eu_2O_3 сравниваются при энергии 339 кэВ, тогда как в стали 08X18N10T это происходит при значительно более низкой энергии 116 кэВ.

Эти данные позволяют заключить, что в энергетическом интервале гамма-излучения изотопов европия можно выделить две области, в которых механизмы взаимодействия излучения с материалами источника качественно различаются. Это низкоэнергетическая область фотопоглощения и высокоэнергетическая область комптоновского рассеяния. При граничных энергиях $E = 200 \dots 400$ кэВ оба процесса близки по своему влиянию.

Можно ожидать, что механизмы формирования эффективных гамма-спектров источников различны для выделенных выше энергетических областей. Далее мы подтвердим этот вывод количественными данными моделирования.

3.2. ОСЛАБЛЕНИЕ ПЕРВИЧНЫХ СПЕКТРАЛЬНЫХ ЛИНИЙ

Для исследования влияния ослабления фотонов на эффективные спектры европиевых источников различных конструкций мы рассчитали энергетические зависимости $R(E)$ отношения плотности потока энергии излучения идеального источника без самопоглощения к плотностям потока энергии реальных источников. Чем больше это отношение для первичных линий спектра, тем сильнее они ослабляются в источнике. Результаты расчета приведены на рис. 8.

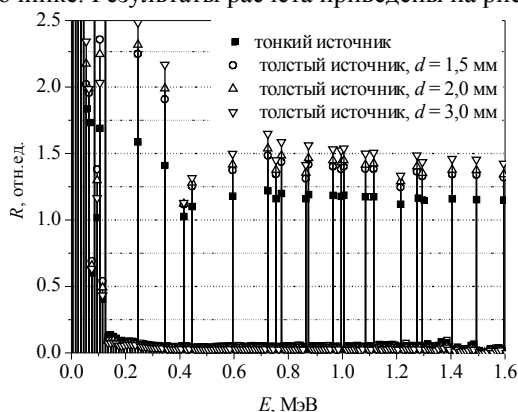


Рис. 8. Отношения спектров плотности потока энергии фотонов идеального источника к соответствующим спектрам излучения источников различных конструкций

На рис. 8 с очевидностью прослеживается существенная зависимость степени ослабления интенсивности первичных линий от параметров конструкции источника. В области комптоновского рассеяния $E > 400$ кэВ степень ослабления слабо зависит от энергии и определяется только параметрами конструкции (в частности, толщиной внешней оболочки d). Причина заключается в слабой зависимо-

сти коэффициентов ослабления $\mu(E) \approx \mu_k(E)$ от энергии. Видно, что тонкий источник менее ослабляет излучение, чем толстый: для него характерные значения степени ослабления в комптоновской области примерно равны 20%, а для толстого источника они составляют около 40% и возрастают до 60% с ростом толщины внешней оболочки d с 1,5 до 3 мм.

В области фотопоглощения отношение R быстро возрастает. Эффект связан с резким ростом $\mu_{\phi}(E)$ с уменьшением энергии. Наиболее существенно ослабляются низкоэнергетические линии спектра радионуклида ^{155}Eu ($E < 50$ кэВ), для которых степень ослабления достигает нескольких десятков. Можно сделать вывод, что такие фотоны практически полностью поглощаются в источниках и дают, наряду с заряженными частицами бета-спектров излучения, основной вклад в значение энергетических коэффициентов самопоглощения источников.

3.3. ГЕНЕРАЦИЯ РАССЕЯННЫХ И ВТОРИЧНЫХ ФОТОНОВ

Дополнительным по отношению к ослаблению первичных линий является эффект генерации рассеянного и вторичного излучения. Главный механизм этого эффекта состоит в комптоновском рассеянии, хотя некоторый малый вклад дают и тормозное излучение электронов отдачи, флуоресцентные фотоны, а также аннигиляционное излучение позитронов, образованных в процессе рождения пар.

Рассеянными и вторичными фотонами на рис. 8 соответствуют фоновые значения отношения R , меньшие единицы. Более детально эффект можно оценить количественно по данным рис. 9.

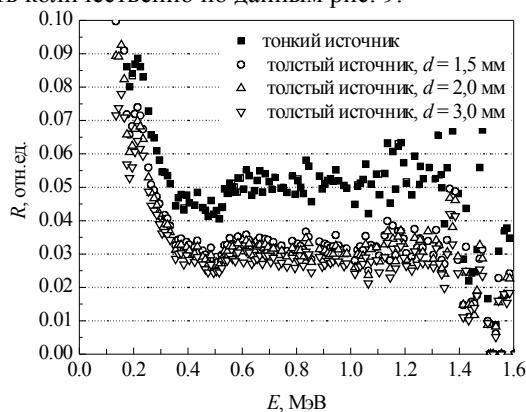


Рис. 9. Отношения спектров плотности потока энергии рассеянных и вторичных фотонов идеального источника к соответствующим спектрам излучения источников различных конструкций

На рис. 9 $R \ll 1$. Это означает, что уровень генерации рассеянных фотонов в источниках примерно на полтора порядка превышает уровень их генерации фотонами исходного спектра в воздухе.

В энергетической области комптоновского рассеяния $E > 400$ кэВ отношение R на рис. 9 слабо зависит от энергии и характеризует конструкцию источника. По данным рисунка можно оценить, что тонкий источник производит примерно в полтора раза меньше рассеянных и вторичных фотонов, чем тол-

стый, для которого уровень их генерации возрастает с ростом толщины внешней оболочки d .

В области фотопоглощения рассеянные и вторичные фотоны, как и первичные, сильно поглощаются материалами реальных источников (в идеальном источнике этот эффект практически отсутствует). Поэтому спектральная плотность рассеянных и вторичных фотонов уменьшается, что приводит к резкому возрастанию отношения R при $E < 400$ кэВ.

Таким образом, в наиболее существенной с точки зрения применений гамма-источников на базе изотопов европия энергетической области, где доминирует комптоновское рассеяние фотонов, конструкции источников могут быть охарактеризованы слабо зависящими от энергии коэффициентами ослабления первичных фотонов и скоростями генерации рассеянных и вторичных фотонов. Эти параметры количественно характеризуют оптимальность конструкции источника.

Следует отметить, что рассеянные и вторичные фотоны дают заметный вклад в полную плотность потока энергии излучения источников на базе изотопов европия. Этот вклад можно оценить, рассчитав отношение суммарных спектральных интенсивностей в соответствующих каналах спектра рис. 5,а.

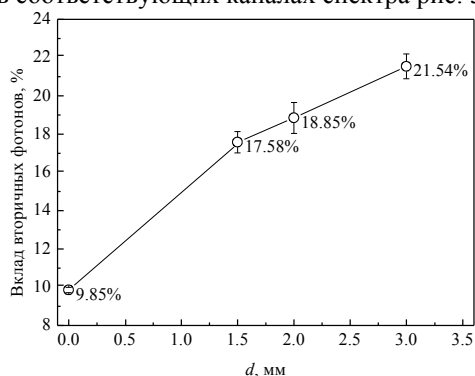


Рис. 10. Зависимость относительного вклада рассеянных и вторичных фотонов в полную плотность потока энергии гамма-излучения в детекторе, от толщины внешней оболочки толстого источника

Для идеального источника, когда рассеянные фотоны образуются только в воздухе, этот вклад не превышает 1%. Для реальных источников величина этого вклада существенно зависит их конструкции.

Для тонкого источника этот вклад составляет $(10,70 \pm 0,58)\%$. Результаты расчетов для толстого источника в зависимости от толщины d его внешней оболочки представлены на рис. 10.

Как видно, в отсутствие внешней оболочки толстый источник характеризуется почти тем же относительным вкладом рассеянного и вторичного излучения, что и тонкий. С ростом толщины внешней оболочки этот вклад быстро возрастает, и при $d = 3$ мм около $1/5$ потока энергии в детекторе формируются вторичным излучением, которое практически утратило информацию об исходном спектре излучения радионуклидов. Для тонкого источника вклад такого излучения составляет около $1/10$.

Отметим в заключение, что ввиду слабой энерге-

тической зависимости μ_n/ρ в формуле (6) эти оценки справедливы и для относительных вкладов вторичного излучения в полную мощность кермы фотонного излучения в воздухе.

3.4. ЭФФЕКТ УВЕЛИЧЕНИЯ ЖЕСТКОСТИ ИЗЛУЧЕНИЯ

Другим важным параметром эффективного спектра излучения гамма-источника, является средняя энергия испускаемых фотонов $\langle E \rangle$. Хотя ее применимость для описания всего широкого спектра излучения европиевых источников весьма ограничена, она тем не менее является количественной характеристикой перераспределения энергии излучения в спектре в результате его взаимодействия с материалами источника.

Средняя энергия для эффективного спектра источника может быть рассчитана по формуле:

$$\langle E \rangle = \frac{\int_{E_{\min}}^{E_{\max}} E \cdot I(E) dE}{\int_{E_{\min}}^{E_{\max}} I(E) dE} \quad (10)$$

Результаты таких расчетов приведены на рис. 11. Дополнительное значение $\langle E \rangle = 0,715$ кэВ отвечает средней энергии спектра идеального источника, когда спектр модифицируется только в результате рассеяния в воздухе. Оно весьма близко к средней энергии $\langle E \rangle = 0,713$ кэВ спектра излучения радионуклидов для выбранной смеси изотопов.

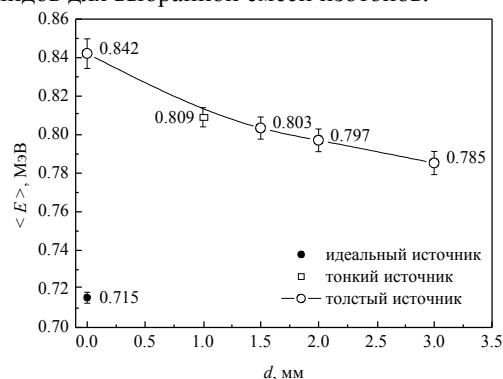


Рис. 11. Средние энергии гамма-излучения различных вариантов конструкции источников на базе изотопов европия в зависимости от толщины d внешней оболочки источника

Результаты расчетов показывают, что средние энергии излучения реальных источников заметно превышают среднюю энергию исходного спектра излучения радионуклидов. Относительное увеличение составляет около 10% и достигает 18% для модельного толстого источника без внешней оболочки. Таким образом, излучение реальных источников в целом является более жестким, чем излучение исходной смеси радионуклидов европия.

Это, конечно, не означает, что реальные массивные источники в абсолютном исчислении излучают больше жестких фотонов, чем это способны сделать содержащиеся в них радионуклиды. Эффект увеличения жесткости спектра является по своей природе относительным и связан с преимущественным

поглощением в материалах источника низкоэнергетической части исходного спектра гамма-излучения.

Интересная особенность эффекта увеличения жесткости излучения состоит в уменьшении величины эффекта с ростом толщины оболочек источника (см. рис. 11). На первый взгляд, оболочки поглощают фотоны низких энергий и потому должны давать вклад в увеличение жесткости спектра. Однако существует и конкурирующий механизм, который в данном случае оказывается более важным.

В широкой энергетической области комптоновского рассеяния в оболочках источника приводит к появлению рассеянных фотонов с более низкими, нежели у первичных фотонов, энергиями, что приводит к возрастанию статистического веса низкоэнергетической области спектра. Поскольку среднее число рассеянных фотонов приблизительно пропорционально толщине d оболочки, с ростом d обязанное комптоновскому рассеянию смягчение спектра становится более заметным.

Однако можно заключить, что эффект увеличения жесткости спектра остается доминирующим эффектом для реалистических значений параметров конструкции источников на базе изотопов европия.

3.5. РОЛЬ КОМПОНЕНТОВ КОНСТРУКЦИИ ИСТОЧНИКА В ФОРМИРОВАНИИ ЭФФЕКТИВНОГО СПЕКТРА

В заключительной части работы мы исследуем чувствительность эффективных энергетических спектров гамма-излучения европейских источников к величинам параметров их конструкции.

На рис. 12 представлены отношения спектральных распределений $I_E(E)$ для различных конструкций тонких и толстых источников к спектру толстого источника с толщиной внешней оболочки $d = 3$ мм. Точки на рис. 12 характеризуют как первичное (значения, большие единицы), так и вторичное излучение (значения, меньшие единицы).

По первичному излучению в наиболее важной энергетической области комптоновского рассеяния тонкий источник примерно на 25% более эффективен, нежели выбранный в качестве стандартного толстый источник. Преимущество тонкого источника еще более усиливается в области фотопоглощения. Уменьшение толщины внешней оболочки толстого источника до 1,5 мм увеличивает его эффективность на 7...8%.

Интенсивность высокоэнергетических рассеянных фотонов для толстых источников примерно в 1,8 раза выше, чем для тонких, что согласуется с интегральными оценками раздела 3.3. Уменьшение толщины внешней оболочки уменьшает это различие на несколько процентов.

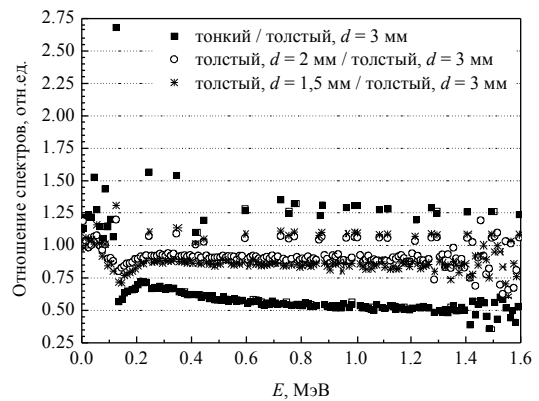


Рис. 12. Энергетические зависимости отношения спектров источников различных конструкций к спектру толстого источника с $d = 3$ мм

Для выяснения роли основных частей конструкции источников — активного сердечника и оболочек — мы рассчитали эффективные спектры $I_E(E)$ излучения для двух “вырожденных” моделей толстого источника с $d = 3$ мм. В модели 1 (модели активного сердечника) материал оболочек был заменен на воздух. В модели 2 (модели оболочек) на воздух был заменен оксид европия активного сердечника с сохранением исходного спектра излучения нуклидов.

Результаты моделирования спектров для двух вырожденных моделей в сравнении со спектром всего источника приведены на рис. 13. Спектры качественно схожи, но различаются количественно.

Наиболее явным отличием спектров вырожденных моделей источника от полного спектра является более высокая интенсивность в низкоэнергетической области, наблюдаемая для модели оболочек (модели 2). Это означает, что низкоэнергетические фотоны поглощаются в основном в сердечнике.

Вырожденные модели отличаются и по спектрам рассеянных и вторичных фотонов (см. рис. 14). При достаточно высоких энергиях спектральная интенсивность вторичного излучения для них существенно меньше, чем для реального источника. Наиболее сильное подавление генерации вторичных фотонов наблюдается в модели активного сердечника. Это означает, что основным источником рассеянных и вторичных фотонов являются стальные оболочки. Поскольку главным механизмом генерации вторичного излучения является эффект Комптона, преимущество материала оболочек над оксидом европия с этой точки зрения заключается в большей плотности ρ и концентрации атомных электронов.

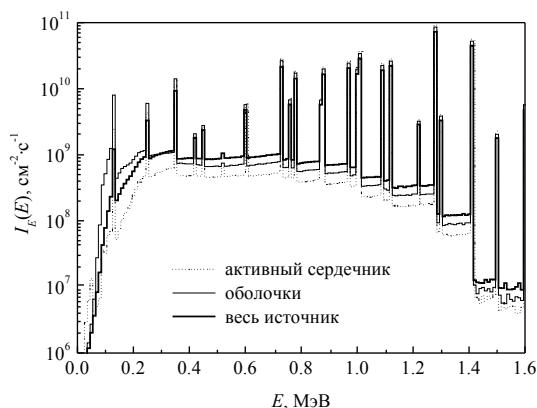


Рис. 13. Эффективные спектры для вырожденных моделей толстого источника с $d = 3$ мм в сравнении с полным спектром такого источника

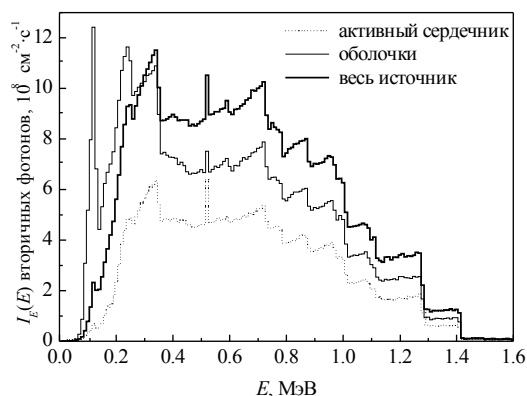


Рис. 14. Спектры плотности потока энергии вторичных фотонов для вырожденных моделей и полной модели толстого источника с $d = 3$ мм

При низких энергиях (в области доминирования фотопоглощения) в модели оболочек наблюдаются резкие пики, связанные с отсутствием в этой модели поглощения рассеянных фотонов в сердечнике.

Можно количественно оценить различия вкладов активного сердечника и оболочек источника в формирование эффективного спектра с помощью следующей простой модели.

Введем феноменологические функции энергии $\chi_1(E)$ и $\chi_2(E)$ для активного сердечника и оболочек, описывающие трансформацию спектра $I_E(E)$ при переходе от полной модели источника к вырожденным моделям:

$$I_E(E) = I_E^{(0)}(E) \cdot \chi_1(E) \cdot \chi_2(E) = I_E^{(1,2)}(E) \cdot \chi_{1,2}(E), \quad (11)$$

где $I_E^{(0)}$ – спектр излучения идеального источника, а $I_E^{(1)} = I_E^{(0)} \cdot \chi_1$ и $I_E^{(2)} = I_E^{(0)} \cdot \chi_2$ – спектры излучения для вырожденных моделей 1 и 2.

Соотношения между $\chi_1(E)$ и $\chi_2(E)$ можно оценить по данным моделирования с помощью анализа соотношений спектров

$$\frac{I_E^{(1,2)}(E)}{I_E(E)} = \frac{1}{\chi_{1,2}(E)}, \quad (12)$$

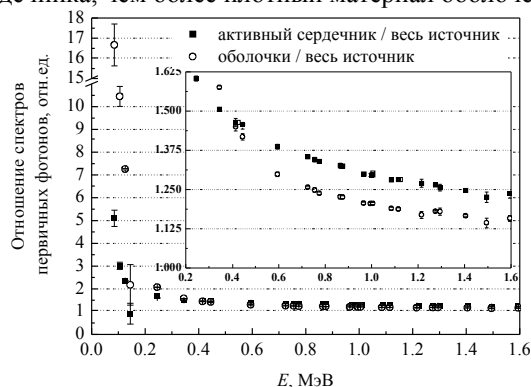
представленных для первичных и вторичных фотонов на рис. 15 (врезки детально демонстрируют поведение этих соотношений в высокоэнергетической области).

Для первичных фотонов при высоких энергиях выполняется соотношение $I_E^{(1)} > I_E^{(2)}$ (см. рис. 15,а). Из формулы (12) следует, что $\chi_1(E)$ примерно на 10% больше, чем $\chi_2(E)$. Принимая в внимание определения (11) этих функций, можно заключить, что основным механизмом ослабления первичных фотонов высоких энергий является некогерентное комптоновское рассеяние в материале оболочек.

В низкоэнергетической области для первичных фотонов, напротив, $\chi_1(E) < \chi_2(E)$. Это подтверждает тот факт, что ослабление низкоэнергетической части исходного спектра в основном происходит при фотопоглощении в активном сердечнике.

Для вторичного излучения из рис. 15,б видно, что $\chi_1(E) < \chi_2(E)$ почти везде, кроме области крайне низких энергий. В комптоновской области энергий эти функции очень слабо зависят от энергии фотонов: $\chi_1(E) \approx 1,5$, а $\chi_2(E) \approx 2,0$. Следовательно, оболочка источника примерно на 25% эффективнее по генерации вторичного излучения, чем сердечник.

В низкоэнергетической области отношение спектра вторичного излучения для вырожденной модели оболочек к полному спектру резко возрастает из-за сильного фотопоглощения вторичных фотонов в сердечнике (такие фотоны просто не достигают оболочек). Отношение имеет резкий максимум при $E \approx 100$ кэВ. При еще более низких энергиях, напротив, более интенсивная генерация вторичных фотонов наблюдается для модели активного сердечника, и χ_1 превышает χ_2 примерно в 5 раз. Это связано с эффектом меньшей, чем у стали, плотности оксида европия: фотоны столь низких энергий с большей вероятностью покидают менее плотный материал сердечника, чем более плотный материал оболочек.



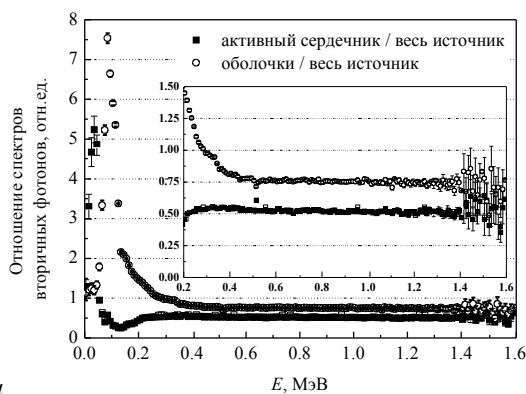


Рис. 15. Энергетические зависимости отношений $I_E^{(1,2)} / I_E = \chi_{1,2}^{-1}$ для первичного (а) и вторичного (б) излучения вырожденных моделей источника

Таким образом, в целом по порядку величины активный сердечник и оболочки источника дают близкие вклады в модификацию исходного спектра излучения радионуклидов европия при его взаимодействии с элементами конструкции гамма-источника. Количественное различие вкладов сердечника и оболочек в наиболее важной области высоких энергий фотонов не превышает 10...25%. В пределах этого различия можно утверждать, что защитные оболочки источника играют роль комптоновского рассеивателя, определяющую ослабление высокоэнергетических линий исходного спектра и генерацию рассеянных и вторичных фотонов. Активный сердечник источника в основном определяет величину самопоглощения фотонов в источнике и форму низкоэнергетической части спектра.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Проведенное в настоящей работе моделирование методом Монте-Карло энергетических спектров гамма-излучения источников на базе радионуклидов европия позволяет сделать следующие выводы.

Эффективные спектры излучения источников различных конструкций сохраняют основные черты исходных спектров гамма-излучения радионуклидов европия и отличаются от них несколько меньшей интенсивностью излучения первичных линий спектра и появлением фона рассеянных в элементах конструкции источника и вторичных фотонов, который может содержать, в зависимости от конструкции источника, до 10...20% излученной энергии.

Примерно половина мощности кермы (или экспозиционной дозы) излучения источника в воздухе создается испускаемыми фотонами с энергиями, превышающими 1 МэВ.

Основными механизмами формирования эффективного спектра европиевых источников являются некогерентное комптоновское рассеяние фотонов в материалах защитных оболочек источников и фотопоглощение в материале активных сердечников. Эти механизмы приводят к примерно 10%-ному увеличению жесткости излучения источника в сравнении с излучением радионуклидов европия.

Эффективные спектры излучения источников де-

монстрируют существенную зависимость от их геометрии и деталей конструкции. Результаты исследования двух типов европиевых источников с двойной инкапсуляцией активного материала — тонкого цилиндрического стержня и толстого составного источника — показали, что тонкий источник обладает в расчете на единицу активности радионуклидов примерно на 20% большей эффективностью генерации излучения высокоэнергетических фотонов, нежели толстый. Это различие достаточно велико с точки зрения практического использования в промышленных радиационных технологиях.

Однако преимущества толстых составных источников по технологии изготовления и простоте транспортировки и загрузки источников в излучатели гамма-установок могут оказаться решающим фактором при выборе конструкции европиевых источников. При этом путями оптимизации конструкции таких источников являются уменьшение плотности активного материала (и увеличение его удельной активности), а также уменьшение толщины защитных оболочек до минимальных величин, достаточных с точки зрения действующих стандартов безопасности эксплуатации закрытых источников ионизирующего излучения. Расчеты показали, что такая оптимизация может обеспечить до 10% выигрыша по эффективности использования гамма-излучения радионуклидов европия.

Авторы выражают глубокую благодарность сотрудникам ГНЦ РФ НИИАР Е.П. Клочкову и В.Д. Рисованному за плодотворные обсуждения характеристик европиевых гамма-источников, а также Майклу Брауну, Дейвиду Эйкину и Карлу Холдеру за интерес к работе и ценные дискуссии по поводу перспектив европиевых радиационных технологий.

Работа выполнена при финансовой поддержке Украинского научно-технологического центра, партнерский проект УНТЦ № Р-095 “Застосування европію для гамма-обробки в Україні та Росії”.

ЛИТЕРАТУРА

- 1.V.D. Risovany, A.V. Zakharov, E.P. Klochkov, T.M. Guseva, V.B. Ponomarenko, V.M. Chernyshov. Production of gamma-sources, based on europium oxide in fast reactors. // *Technical committee meeting on absorber materials, control rods and designs of backup reactivity shutdown systems for breakeven cores and burner cores for reducing plutonium stockpiles. Obninsk (Russian Federation). 3-7 Jul 1995 IAEA-TECDOC-884, 1996. P. 200-213.*
- 2.В.Д. Рисованный, Е.П. Клочков, В.Б. Пономаренко, А.В. Захаров. *Европий в ядерной технике*. Демитровград: ГНЦ РФ НИИАР, 1997, 149 с.
- 3.S. Agostinelli, J. Allison, K. Amako, J. Apostolakis et al. Geant4 — a simulation toolkit. // *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research. Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*. 2003. v. 22. No. 3. p. 250 – 303.
- 4.J.M. Boone, A.E. Chavez. Comparison of X-ray Cross Sections for Diagnostic and Therapeutic Medical

Physics. // *Med. Phys.* 1996. v. 23, No. 12.
p. 1997–2005.
S.W. Bambynek, T. Barta, P. Christmas, N. Coursol et
al. *X-ray and Gamma-ray Standards for Detector Cali-*

bration. Report by the Coordinated Research IAEA Pro-
gramme. IAEA-TECDOC-619, 1991.
G.C.L. Dunford, R.R. Kinsey. *NuDat System for Access
to Nuclear Data.* IAEA-NDS-205 (BNL-NSC-65687),
IAEA, Vienna, Austria, 1998.

**МОДЕЛЮВАННЯ ЕНЕРГЕТИЧНИХ СПЕКТРІВ ГАММА-ВИПРОМІНЮВАННЯ
ПЕРСПЕКТИВНИХ РАДІАЦІЙНО-ТЕХНОЛОГІЧНИХ ДЖЕРЕЛ НА ОСНОВІ
ІЗОТОПІВ ЄВРОПІУ**

S.V. Dyul'dya, M.I. Bratchenko, M.O. Skorobogatov

Шляхом математичного моделювання методом Монте-Карло детально досліджені ефективні гамма-спектри реалістичних моделей потужних джерел гамма-випромінювання на базі радіонуклідів європію. Вивчені фізичні механізми формування ефективних спектрів, які полягають у залежному від енергії фотонів ослабленні первинного випромінювання та генерації розсіяного та вторинного випромінювання та призводять до збільшення жорсткості гамма-випромінювання джерела. Досліджено залежність характеристик спектрів випромінювання європейських гамма-джерел від параметрів їх конструкції та вироблено рекомендації щодо її оптимізації.

**COMPUTER MODELING OF THE GAMMA SPECTRA
OF THE PROSPECTIVE EUROPIUM-BASED GAMMA SOURCES FOR IRRADIATION TECHNOLOGIES**

S.V. Dyul'dya, M.I. Bratchenko, M.A. Skorobogatov

The detailed investigation of the effective gamma spectra of realistic models of powerful gamma sources based on the Europium radionuclides has been carried out by means of the Monte Carlo computer simulation methods. The physical background of the effective spectra formation has been studied, including the energy-dependent attenuation of primary photons and the production of scattered and secondary photons, and the spectrum hardening effect has been investigated. The dependency of the Europium gamma sources spectra on the parameters of their design has been examined and the recommendations on the optimization of the design of sources have been elaborated.