

ОЦІНЮВАННЯ НЕВИЗНАЧЕНОСТІ ВИМІРЮВАННЯ АЛЬФА/ГАММА-ВІДНОШЕННЯ СЦИНТИЛЯТОРІВ

Б.В. Гриньов, Л.Л. Ващенко, Н.Р. Гурджян, О.В. Зеленська, В.Р. Любинський, Л.Й. Міцай, В.О. Тарасов

Інститут сцинтиляційних матеріалів НАН України, пр. Науки, 60, 61001, м. Харків, Україна, nana.mneyan@gmail.com

Анотація

У роботі оцінювалася невизначеність вимірювання співвідношення відгуків сцинтилятора на збудження різними видами іонізуючого випромінювання або альфа/гамма-відношення (α/γ). Дана характеристика визначає здатність сцинтилятора виділяти високоенергетичні спектральні лінії від альфа-випромінювачів на тлі супутнього гамма-випромінювання. Відповідно до ДСТУ-Н РМГ 43: 2006 проведено оцінювання невизначеності вимірювання α/γ -відношення тонких сцинтиляторів на основі монокристалів ZnSe(Te), CsI(Tl), BGO та пластмасових сцинтиляторів (ПС), що випускаються Інститутом сцинтиляційних матеріалів НАН України. На стандартному спектрометричному тракті, з використанням ФЕП R1307, багаторазово визначалися відгуки сцинтиляторів при збудженні альфа-випромінюванням ^{238}Pu та гамма-випромінюванням ^{137}Cs .

Показано, що для досліджуваних сцинтиляторів, що мають α/γ -відношення у діапазоні від 0,85 до 0,07, відповідно, невизначеність за типом А варіюється від 0,3% до 0,9%. Сумарна невизначеність результату вимірювання знаходиться у діапазоні від 2,8% до 3,0%, а розширена невизначеність - у діапазоні від 5,6% до 6,0%.

Ключові слова: сцинтилятор; альфа/гамма-відношення; невизначеність

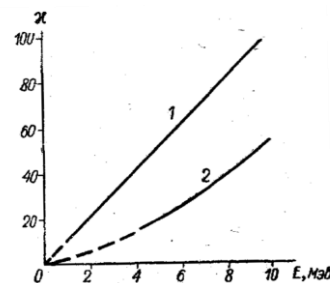
Вступ

Важливою характеристикою сцинтиляційних спектрометрів є співвідношення відгуків (світлових виходів) сцинтилятора на збудження різними видами іонізуючого випромінювання. Дана характеристика визначає здатність сцинтилятора виділяти високоенергетичні заряджені частинки на тлі супутнього гамма-випромінювання.

У ідеалі, частинки різної природи, але з однаковою енергією, при поглинанні у сцинтиляторі повинні давати однаковий світловий вихід. Однак частинки з високою щільністю іонізації (протони, альфа-частинки, важкі іони, уламки ділення) дають в більшості сцинтиляторів меншу кількість фотонів, ніж гамма-кванти. Відношення світлового виходу даного типу частинок до світлового виходу гамма-квантів з рівною енергією називається квенчінг-фактором (від англ. quenching - «гасіння»). Квенчінг-фактор для альфа-частинок називають альфа/бета - (α/β) або, що рівнозначно, альфа/гамма - відношенням (α/γ).

Пояснення механізму цього явища наводиться у багатьох роботах. Ще у [1-3] було показано, що світловий вихід сцинтилятора залежить від питомих втрат енергії зарядженої частинки при проходженні через сцинтилятор (dE/dx), тобто від щільності його іонізації. Важкі заряджені частинки (альфа-частинки та ін.) з високою щільністю іонізації, на відміну від легких (електрони), створюють у сцинтиляторі локальні ділянки із структурними ушкодженнями (дефектами). На цих ділянках відбувається гасіння світлового виходу за рахунок поглинання збудження на дефектах та наступних безвипромінюючих переходів. Таким чином, висока іонізуюча здатність заряджених частинок призводить до придушення світлового імпульсу.

Крім того, залежність між світловим виходом сцинтилятора та щільністю його іонізації для важких частинок нелінійна, і пропорційність спостерігається тільки при значеннях енергії, які більші деякої величини. Як приклад, на Мал. 1 наведена залежність світлового виходу сцинтилятора на основі NaI(Tl) від енергії при збудженні гамма-випромінюванням та альфа-частинками [4].



Мал. 1. Залежність світлового виходу від енергії сцинтилятора NaI(Tl) при збудженні гамма-випромінюванням (1) та альфа-частинками (2) [4]

Вимірювання α/γ -відношення різних сцинтиляторів провадилося багатьма авторами, наприклад у роботах [4-6]. Було встановлено, що величина α/γ -відношення, в залежності від типу сцинтилятора та його властивостей, може змінюватися від значень 0,8-0,9 - для напівпровідникових кристалів, до значень 0,07-0,1 - для органічних кристалів та пластмасових сцинтиляторів (ПС). Однак, незважаючи на велику кількість вимірювальних робіт, дані з оцінювання невизначеності вимірювання α/γ -відношення у літературі відсутні. Даний факт послужив мотивацією для написання цієї роботи.

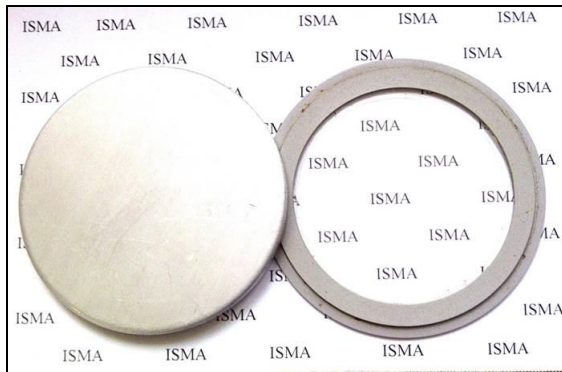
Мета роботи

Оцінювання невизначеності вимірювання α/γ -відношення різних скінтіляторів

Виклад основного матеріалу

Експеримент

Провадилось вимірювання α/γ -відношення скінтіляторів на основі монокристалів ZnSe(Te), CsI(Tl), BGO та ПС, що випускаються Інститутом скінтіляційних матеріалів НАН України. Для вимірювання α/γ -відношення CsI(Tl) використовувався стандартний упакований скінтілятор для реєстрації альфа-частинок (Мал. 2) з розмірами - $\varnothing 40 \times 0,35$ мм. Вхідне вікно скінтілятора було відполіроване та покрите захисним шаром акрилового лаку завтовшки 5 мкм. Розміри неупакованих скінтіляторів на основі ZnSe(Te), BGO та ПС становили $10 \times 10 \times 2$ мм, $20 \times 20 \times 5$ мм та $\varnothing 30 \times 5$ мм відповідно. Їх вхідні вікна також були відполіровані.



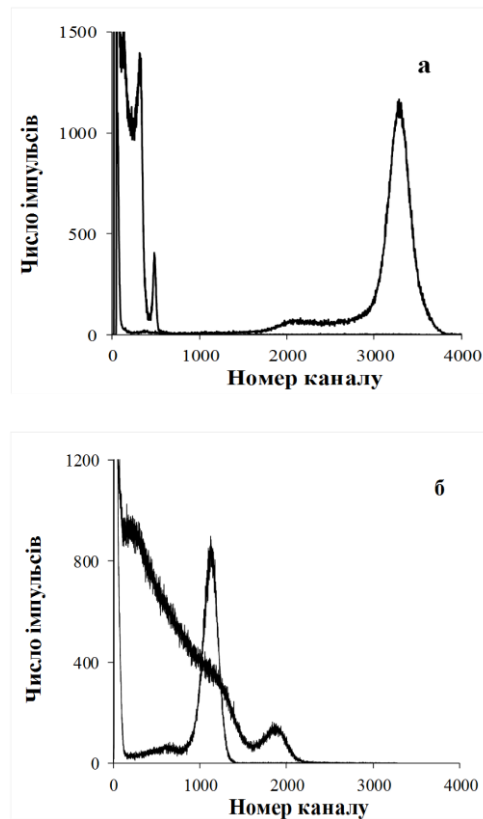
Мал. 2. Скінтілятор на основі CsI(Tl) для реєстрації альфа-частинок.

Вимірювання провадилися відповідно до [7] на стандартному спектрометричному тракті [8], з використанням ФЕП R1307 "Hamamatsu". Для кожного скінтілятора підбиралася величина часу інтегрування сигналу, що забезпечує максимальну амплітуду світлового виходу (відгуку): ZnSe(Te) – 20 мкс, CsI(Tl) – 4 мкс, BGO – 2 мкс, ПС – 1 мкс.

Скінтілятори збуджувалися джерелом альфа-частинок ^{238}Pu ($E_\alpha=5456$ кеВ) та джерелом гамма-випромінювання ^{137}Cs ($E_\gamma=662$ кеВ). Для забезпечення паралельності падаючого пучка альфа-частинок джерело ^{238}Pu розташовувалося зверху над скінтілятором на тефлоновому багатодірковому коліматорі, товщиною 1,35 мм. Джерело ^{137}Cs розташовувалося аналогічно. Питомі втрати (dE/dx) енергії ^{238}Pu та ^{137}Cs у коліматорі розраховувалися за програмою NIST [9].

Багаторазово ($n=3$) визначалися амплітуди імпульсів скінтіляторів, у каналах: V_α - при збудженні ^{238}Pu та V_γ - при збудженні ^{137}Cs . Отримані спектри скінтіляторів на основі ZnSe(Te) та ПС представлені на Мал. 3. Треба зазначити, що для ПС пік повного поглинання при реєстрації гамма-випромінювання ^{137}Cs відсутній. Для визначення

відгуку використовується пік від конверсійних електронів з $E_{KE}=624$ кеВ.



Мал. 3. Спектри скінтіляторів при збудженні ^{137}Cs та ^{238}Pu : а) ZnSe (Te), б) ПС

Оцінювання невизначеності

Величину α/γ -відношення визначали за формулою:

$$\alpha / \gamma = \frac{V_\alpha - V_0}{E_\alpha} : \frac{V_\gamma - V_0}{E_\gamma}, \quad (1)$$

де: V_0 - значення початкової точки характеристики перетворення спектрометричного пристрою, у каналах.

Після приведення формули (1) до більш зручного для подальших розрахунків виду, отримаємо:

$$\alpha / \gamma = \frac{(V_\alpha - V_0) E_\gamma}{E_\alpha (V_\gamma - V_0)} = f_{\alpha/\gamma} \frac{E_\gamma}{E_\alpha}, \quad (2)$$

де: $f_{\alpha/\gamma} = \frac{(V_\alpha - V_0)}{(V_\gamma - V_0)}$ - відношення амплітуд імпульсів від ^{238}Pu та ^{137}Cs .

Оцінювання невизначеності вимірювання α/γ -відношення провадилися відповідно до [10].

Найбільший вплив на результат вимірювань α/γ -відношення надають наступні фактори:

- статистичний розкид результату багаторазових вимірювань відношення амплітуд імпульсів $f_{\alpha/\gamma}$;
- невизначеність паспортного значення E_α ;
- невизначеність паспортного значення E_γ ;

- приладова невизначеність $f_{пр}$, що виникає через обмежену чутливість шкали багатоканального аналізатора та невизначеності відліків V_α , V_γ та V_0 ;

- невизначеність вимірювання товщини коліматора K_1 .

Вплив інших факторів та можливості їх мінімізації описані у [8].

З огляду на що впливають чинники, математичну модель вимірювання α/γ -відношення сцинтиляторів можна представити у вигляді:

$$\alpha/\gamma = f_{\alpha/\gamma} \frac{E_\gamma}{E_\alpha} \times f_{пр} \times K_1. \quad (3)$$

Невизначеність вимірювання α/γ -відношення, обчисленого за типом А, $u_A(\bar{f}_{\alpha/\gamma})$, що враховує статистичний розкид результатів, визначалася, в припущенні про нормальний закон розподілу з рівнем довіри $P_d=0,95$, як СКО, за формулою:

$$u_A(\bar{f}_{\alpha/\gamma}) = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^n (f_{\alpha/\gamma_i} - \bar{f}_{\alpha/\gamma})^2}{n(n-1)}}, \quad (4)$$

де: n – число вимірювань.

Сумарна систематична відносна невизначеність вимірювання α/γ - відношення, обчислена за типом В, у відсотках, $\tilde{u}_{С,В}(\alpha/\gamma)$, оцінювалася, у загальному вигляді, відповідно до стандарту [10], за формулою:

$$\tilde{u}_{С,В}(\alpha/\gamma) = \sqrt{\tilde{u}_{В,ф_{пр}}^2 + \tilde{u}_{В,E_\alpha}^2 + \tilde{u}_{В,E_\gamma}^2 + \tilde{u}_{В,K_1}^2}, \quad (5)$$

де відносна оцінка приладової невизначеності, $\tilde{u}_{В,ф_{пр}}$, обчислюється з виразу:

$$\tilde{u}_{В,ф_{пр}} = \sqrt{\left(\frac{\partial \text{Ln } f_{\alpha/\gamma}}{\partial V_\alpha}\right)^2 \cdot u_{В,V_\alpha}^2 + \left(\frac{\partial \text{Ln } f_{\alpha/\gamma}}{\partial V_\gamma}\right)^2 \cdot u_{В,V_\gamma}^2 + \left(\frac{\partial \text{Ln } f_{\alpha/\gamma}}{\partial V_0}\right)^2 \cdot u_{В,V_0}^2} \times 100. \quad (6)$$

Стандартна невизначеність типу В i -того фактора, $u_{В,x_i}$, визначається [10] як межа допустимої

похибки θ_{x_i} даного чинника при рівномірному розподілі похибки на інтервалі $\pm \theta_{x_i}$:

$$u_{В,x_i} = \frac{\theta_{x_i}}{\sqrt{3}}. \quad (7)$$

Розширена невизначеність вимірювання α/γ -відношення, $\tilde{U}_p(\alpha/\gamma)$, оцінюється [11] з виразу:

$$\tilde{U}_p(\alpha/\gamma) = k \times \tilde{u}_C(\alpha/\gamma), \quad (8)$$

де: $k=2$ - коефіцієнт охоплення для $P_d=0,95$.

З урахуванням (4-8), остаточний вираз для чисельного оцінювання відносної розширеної невизначеності вимірювання α/γ -відношення сцинтиляторів матиме вигляд:

$$\tilde{U}_p(\alpha/\gamma) = 2 \sqrt{\left[\frac{u_A(\bar{f}_{\alpha/\gamma})}{\bar{f}_{\alpha/\gamma}} \right]^2 \times 10^4 + \frac{\tilde{\theta}_{E_\alpha}^2}{3} + \frac{\tilde{\theta}_{E_\gamma}^2}{3} + \frac{\tilde{\theta}_{K_1}^2}{3} + \left[\frac{\theta_{V_\alpha}}{\sqrt{3}(V_\alpha + V_0)} \right]^2 + \left[\frac{\theta_{V_\gamma}}{\sqrt{3}(V_\gamma + V_0)} \right]^2 + \left[\frac{V_\alpha + V_\gamma + 2V_0}{(V_\alpha + V_0)} \right]^2 \times \left[\frac{\theta_{V_0}}{\sqrt{3}(V_\gamma + V_0)} \right]^2} \times 10^4 \quad (9)$$

де: значення $\tilde{\theta}_{E_\alpha}$ та $\tilde{\theta}_{E_\gamma}$, які зазначені в паспортах на джерела ^{238}Pu та ^{137}Cs , що використовувалися, становили $\pm 1\%$ та $\pm 3\%$ відповідно; значення $\tilde{\theta}_{K_1}$ знаходилося як відношення межі похибки відліку по шкалі штангенциркуля, рівної 0,05 мм, до товщини коліматора, і становило $\pm 3,7\%$; $\theta_{V_\alpha} = \theta_{V_\gamma} = 0,5$ каналу, $\theta_{V_0} = 1$ канал та $V_0 = -2$ каналу [9].

Результати та обговорення

Отримані результати оцінювання складових невизначеності вимірювання α/γ -відношення наведені у Таблиці 1.

Для розрахунків величини α/γ -відношення, табличне значення енергії ^{238}Pu ($E_\alpha = 5456$ кеВ) перераховувалося [9] з урахуванням питомих втрат енергії (dE/dx) альфа-частинки в повітрі при проходженні через багатодірковий коліматор. Отримане значення складо $E_\alpha = 5337$ кеВ.

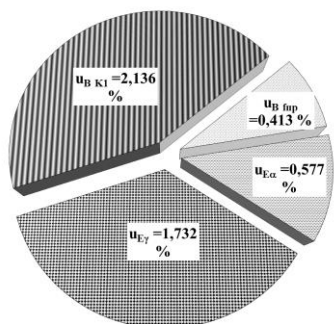
Таблиця 1.

Показники невизначеності вимірювання α/γ -відношення сцинтиляторів

Сцинтилятор	Розмір, мм	$f_{\alpha/\gamma}$	α/γ	$\tilde{u}_A(\bar{f}_{\alpha/\gamma})$, %	$\tilde{u}_{В,ф_{пр}}$, %	$\tilde{u}_{С,В}(\alpha/\gamma)$, %	$\tilde{u}_C(\alpha/\gamma)$, %	$\tilde{U}_p(\alpha/\gamma)$, %
ZnSe(Te)	10×10×2	6,83	0,85	0,306	0,150	2,814	2,83	5,66
CsI(Tl)	∅40×0,35	5,07	0,63	0,935	0,413	2,840	3,00	6,00
BGO	20×20×5	1,58	0,19	0,367	0,208	2,818	2,84	5,68
ПС	∅30×5	0,61	0,07	0,548	0,174	2,815	2,87	5,74

Питомими втратами енергії електронів у повітрі нехтували.

Співвідношення вкладів показників сумарної невизначеності за типом В, $\tilde{u}_{C,B}(\alpha/\gamma)$, вимірювання α/γ -відношення CsI(Tl), наведено на Мал. 4.



Мал. 4. Вклади показників сумарної невизначеності вимірювання α/γ -відношення CsI(Tl)

З Мал. 4 видно, що найбільший внесок у величину $\tilde{u}_{C,B}(\alpha/\gamma)$ вносить невизначеність вимірювання товщини коліматора, а найменший - приладова невизначеність.

Складові розширеної невизначеності $\tilde{U}_p(\alpha/\gamma)$ вимірювання α/γ -відношення усіх скінтіляторів, що випробувались, наведені на Мал. 5.

Як впливає з Таблиці 1 та Мал. 5, чисельні величини показника $\tilde{u}_{C,B}(\alpha/\gamma)$ приблизно однакові для усіх випробуваних скінтіляторів і є набагато більшими, ніж показники невизначеності $u_A(\bar{f}_{\alpha/\gamma})$ та $\tilde{u}_{B,fp}$. Даний факт обумовлений значним внеском у показник $\tilde{u}_{C,B}(\alpha/\gamma)$ величин невизначеності його складових, що зазначені на Мал. 4.

Abstract

In this work, the measuring uncertainty for scintillator responses ratio to excitation by various types of ionizing radiation or the alpha/gamma ratio (α/γ) was estimated. This characteristic determines the ability of the scintillator to resolve high-energy spectral lines from alpha emitters against the background of accompanying gamma radiation. In accordance with DSTU-N RMG 43: 2006, the estimation of the measurement uncertainty of the α/γ ratio of thin scintillators based on ZnSe(Te), CsI(Tl), BGO single crystals and plastic scintillators (PS) produced by the Institute of Scintillation Materials of the National Academy of Sciences of Ukraine was carried out. On a standard spectrometric path, using an R1307 photomultiplier, the scintillator responses were repeatedly determined upon excitation with ^{238}Pu alpha radiation and ^{137}Cs gamma radiation.

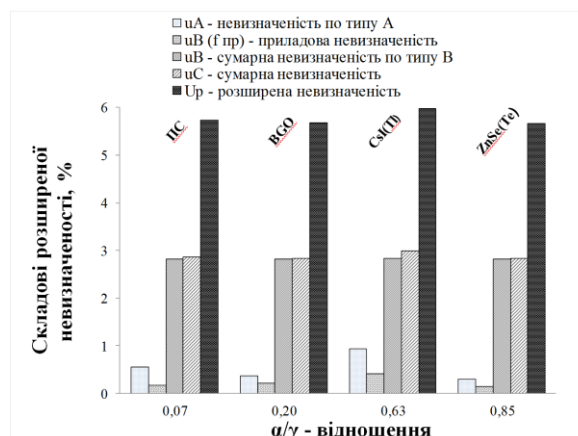
It is shown that for the studied scintillators having an α/γ ratio in the range from 0.85 to 0.07, respectively, the type A uncertainty varies from 0,3% to 0,9%. The total uncertainty for measurement results is in the range from 2,8% to 3,0%, and the expanded uncertainty is in the range from 5,6% to 6,0%.

Key words: scintillator; alpha/gamma ratio; uncertainty.

Анотация

В работе оценивалась неопределенность измерения соотношения откликов скінтілятора на возбуждение различными видами ионизирующего излучения или альфа/гамма-отношения (α/γ). Данная характеристика определяет способность скінтілятора выделять высокоэнергетические спектральные линии от альфа-излучателей на фоне сопутствующего гамма-излучения. В соответствии с ДСТУ-Н РМГ 43:2006 проведено оценивание неопределенности измерения α/γ -отношения тонких скінтіляторов на основе монокристаллов ZnSe(Te), CsI(Tl), BGO и пластмассовых скінтіляторов (ПС), выпускаемых Институтом скінтіляционных материалов НАН Украины. На стандартном спектрометрическом тракте, с использованием ФЭУ R1307, многократно определялись отклики скінтіляторов при возбуждении альфа-излучением ^{238}Pu и гамма-излучением ^{137}Cs .

Усе вищесказане у рівній мірі відноситься і до показників розширеної невизначеності $\tilde{U}_p(\alpha/\gamma)$.



Мал. 5. Складові розширеної невизначеності вимірювання α/γ -відношення скінтіляторів

Висновки

Проведено оцінювання невизначеності вимірювання α/γ -відношення різних скінтіляторів.

Встановлено, що величина розширеної невизначеності вимірювання α/γ -відношення практично однакова для усіх скінтіляторів, що випробувались, незалежно від величини їх α/γ -відношення.

Показано, що невизначеність, розрахована за типом А, та приладова невизначеність вносять незначний вклад у величину сумарної та, відповідно, розширеної невизначеності.

Оцінювання складових сумарної невизначеності, розрахованої за типом В, показало, що основний внесок у загальну суму вносять неточність вимірювання товщини коліматора та невизначеність атестації гамма-джерела, яка зазначена у його паспорті.

Показано, что для исследуемых сцинтилляторов, имеющих α/γ -отношение в диапазоне от 0,85 до 0,07, соответственно, неопределенность по типу А варьируется от 0,3 % до 0,9 %. Суммарная неопределенность результата измерения находится в диапазоне от 2,8% до 3,0 %, а расширенная неопределенность - в диапазоне от 5,6 % до 6,0 %.

Ключевые слова: сцинтиллятор; альфа/гамма-отношение; неопределенность.

Список літератури

1. R. B. Murray, A. Meyer. Scintillation Response of Activated Inorganic Crystals to Various Charged Particles. *Phys. Rev.* Vol. 122, 1961, p. 815.
2. J. B. Birks, *The Theory and Practice of Scintillation counting*, Pergamon Press, Oxford, 1964, p. 513.
3. К. Зигбан. Альфа-, бета- и гамма-спектроскопия. Пер. с англ. / Под редакцией К. Зигбана. М. Атомиздат, Вып. 1. 1969, с. 567.
4. М.Н. Медведев. Сцинтилляционные детекторы. М. Атомиздат, 1977, с. 137.
5. W. Klamra, M. Balcerzyk, M. Kapusta, A. Kerek, M. Moszynski, L.-O. Norlin, D. Novak, G. Possnert. Studies of scintillation light nonproportionality of ZnSe(Te), CsI(Tl) and YAP(Ce) crystals using heavy ions. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research.* A 484 (2002), p. 327–332.
6. E.V. Sysoeva, V.A. Tarasov, O.V. Zelenskaya, V.A. Sulyga. The study of α/γ ratio for inorganic scintillation detectors. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research.* 1998. A 414, p. 274 - 278.
7. ДСТУ ІЕС 62372:2009 Ядерне приладобудування. Сцинтилятори упаковані. Методи контролювання технічного світлового виходу та власної роздільної здатності (ІЕС 62372:2006, ІДТ), Київ, Держстандарт України, 2013, с. 22.
8. Б.В.Гринеv, Н.Р. Гурджян, О.В. Зеленская, В.Р. Любинский, Л.И. Мицай, В.А. Тарасов. К вопросу о различных концепциях оценки качества результатов измерения светового выхода сцинтилляторов. *Аспекты сцинтилляционной техники* (под редакцией А.В. Гектина). Харьков. ИСМА 2017. с. 42 — 71.
9. NIST Standard Reference Database 124. Stopping-power and range tables for electrons, protons, and helium ions. Available : <http://www.nist.gov/pml/data/star/index.cfm>
10. ДСТУ-Н РМГ 43:2006 Метрологія. Застосування Руководства по выражению неопределенности измерений (РМГ 43-2001, ІДТ). Київ, Держспоживстандарт України, 2006, с. 18.

References

1. R. B. Murray, A. Meyer. Scintillation Response of Activated Inorganic Crystals to Various Charged Particles. *Phys. Rev.* Vol. 122, 1961, p. 815.
2. J. B. Birks. *The Theory and Practice of Scintillation counting*. London, Pergamon Press, 1964, 513 p.
3. К. Siegbahn. *Alfa-, beta- and gamma-spectroscopie* (Russ. ed.: К. Siegbahn. *Альфа-, бета- и гамма-спектроскопия*. Moscow, Atomizdat Publ., 1969, 567p.)
4. M.N. Medvedew. *Stsintillyatsionnyie detektory* [Scintillation detectors]. Moscow, Atomizdat Publ., 1977, 137 p. (In Russian)
5. W. Klamra, M. Balcerzyk, M. Kapusta, A. Kerek, M. Moszynski, L.-O. Norlin, D. Novak, G. Possnert. Studies of scintillation light nonproportionality of ZnSe(Te), CsI(Tl) and YAP(Ce) crystals using heavy ions. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research.* 2002, A 484, pp. 327–332.
6. E.V. Sysoeva, V.A. Tarasov, O.V. Zelenskaya, V.A. Sulyga. The study of α/γ ratio for inorganic scintillation detectors. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research.* 1998. A 414, pp. 274 - 278.
7. State standard of Ukraine IEC 62372:2009. Nuclear instrumentation. Packaged scintillators. Methods of controlling the technical light output and its own resolution (IEC 62372:2006, IDT). Kyiv, 2013, 22 p. (In Ukrainian).
8. Б.В. Гринеv, Н.Р. Гурджян, О.В. Зеленская, В.Р. Любинский, Л.И. Мицай, В.А. Тарасов. К вопросу о разnykh koncepcijakh ocenky kachestva rezul'tatov izmeren'ja svetovogho vykhoda scyntyl'jatorov. [On the question of different concepts of quality assessment of the results of measuring the light output of scintillators]. Gektin A. V. (Ed.). *Aspekty stsintillyatsionnoy tehniky* [Aspects of scintillation technology]. Kharkiv, ISMA, 2017. pp 42-71. (In Russian).
9. NIST Standard Reference Database 124. Stopping-power and range tables for electrons, protons, and helium ions. Available : <http://www.nist.gov/pml/data/star/index.cfm>
10. ДСТУ-Н РМГ 43:2006 Метрологія. Застосування Руководства по выражению неопределенности измерений (РМГ 43-2001, ІДТ). Київ, Держспоживстандарт України, 2006, 18 с. State standard of Ukraine DSTU-N RMG 43:2001. Metrology. Application of the Measurement Uncertainty Expression Guide (RMG 43-2001, IDT). Kyiv, state consumer standard, 2006, 18 p. (In Ukrainian).