THE THRESHOLD OF DETECTION OF FISSION MATERIALS
BY ZnWO₄ AND Bi₄Ge₃O₁₂ SCINTILLATION DETECTORS

Gennadiy M. Onyshchenko¹,²*, Volodymyr D. Ryzhikov²,
Ivan I. Yakymenko¹, Oleksandr P. Shchus¹

¹V.N. Karazin Kharkiv National University
4 Svobody Sq., Kharkiv, 61022, Ukraine;
²Institute for Scintillation Materials, STC “Institute for Single Crystals”
National Academy of Sciences of Ukraine, 60 Nauky Ave., 61001 Kharkiv, Ukraine

*E-mail: gennadiy.m.onyshchenko@karazin.ua

Received October 15, 2019; revised November 25, 2019; accepted December 3, 2019

In the present work we found the maximum discovery distance for ²³⁹Pu-Be source using the detectors based on ZWO (ZnWO₄) and BGO (Bi₄Ge₃O₁₂) oxide scintillators. Detection distance was defined by using the radiation monitoring system "PORTAL". This research gives us data for estimation of the contribution of low-energy cascade gamma quanta CGQ. The CGQ emitted by excited scintillator nuclei defined the effective discovery distance of the fast neutrons source. The maximum detection distance was obtained with PMT in a single-photon counting mode. The maximum discovery distance for a BGO scintillator of size 040×40 mm – 38 cm, ZWO scintillator of size 052×40 mm – 54 cm, with reliability about 0.001. The results of the experiment on the ZWO scintillator can be explained by the registration of additional gamma quanta from the inelastic scattering reaction and the CGQ arising from resonant neutron capture region. This two mechanisms further lead to increase the sensitivity of the detector and increase the detection distance of the monitoring system. The key features of the monitoring system are: ZWO oxide scintillator, wide band measuring path, utilize PMT in single photon mode. The obtained detection distance was about 1.4 times higher in comparison with the spectrometric recording mode and 1.9 times higher in values of efficiency. Our results demonstrate the advantages of the ZWO scintillator compared to the BGO and demonstrate the possibility of using the resonant capture mechanism by ZWO detector nuclei to increase the fast neutrons sensitivity. The resonance capture mechanism increase sensitivity and maximum detection distance of the monitoring system. The low-energy gamma-quanta, which discharge of compound nuclei, are substantially suppressed in comparison with the classic spectrometric recording mode.

KEY WORDS: detector, fast neutrons, excited states, countable efficiency, density of nuclear levels

The compact gamma-neutron radiation detectors based on the oxide scintillators allow the creation of compact, highly sensitive systems for monitoring the unauthorized movement of fissile and radioactive materials. The response of detectors during neutron moderation in oxide scintillators is primarily formed by instantaneous gamma quanta of the inelastic scattering reaction and delayed cascade of gamma quanta from the radiation capture reaction in the resonance region emitted by excited states of the scintillator compound nuclei [1, 2]. Both of these reactions can be realized when neutrons are thermalized in some oxide scintillators of a few centimeters in thick.

Earlier [3-5], the signals of oxide scintillation detectors in order to suppress CGQ were amplified in the spectrometric mode, while the time of formation of the signal from the PMT in this mode was in the range 1 – 10 microseconds. Also, the physical efficiency (impulse×s⁻¹×cm⁻²/neutr⁻¹×cm⁻²) in spectrometric mode does not exceed 1. In [6, 7] the first results of counting efficiency studies with ZWO scintillators and BGO. When using the mode of counting single photons in the ZWO scintillator, an increased (up to 60 pulse×s⁻¹×cm⁻²/neutron×s⁻¹×cm⁻²) was detected, compared to the BGO scintillator (2.5 pulse×s⁻¹×cm⁻²/neutron×s⁻¹×cm⁻²), which was explained by the registration of cascade quanta arising in the scintillator nuclei.

The aim of this work is a comparative assessment of the maximum neutron detection distance of a ²³⁹Pu-Be source by a monitoring system using ZWO, BGO detectors in two significantly different modes - spectrometric and single photon counting mode. It was the use of the single photon counting mode in the monitoring system with the highly sensitive wideband preamplifier that made it possible to estimate the contribution of low energy CGQ generated in the compound nuclei of the oxide scintillator to the maximum detection distance.

Since the energy of CGQ emitted by excited states of compound nuclei is small due to the high-level density, a preamplifier with a high gain and baseline low noise level was used. Due to the fact, that the CGQ emitted by the compound nuclei can be superimposed in the measuring path, it was possible to register them separately by using a broadband preamplifier with a differentiating delay line. To ensure the highest possible counting efficiency of cascade gamma-quanta, a single photon counting mode was applied in the PMT, which made it possible to isolate signals of extremely low energies and durations about nanoseconds.

Earlier [6] the obtained data indicated the absence of a noticeable generation of CGQ in the BGO scintillator with size of 040×40 mm. The measurement results by using the monitoring system confirm the previous results, since the measured maximum detection distances for the case of counting single photons and the spectrometric mode for the BGO scintillator are practically the same.

© Gennadiy M. Onyshchenko, Volodymyr D. Ryzhikov, Ivan I. Yakymenko, Oleksandr P. Shchus, 2019
RESEARCH & METHODS

The counting efficiency of neutron detection by oxide scintillators in units of impulse×s⁻¹×cm⁻²/neutron×s⁻¹×cm⁻² was previously estimated according to the procedure described in [6]. For effective coupling of scintillator with monitoring system in current work, we use parameter “maximum distance of discovery”. This parameter is defined by monitoring system threshold and can be obtained by using equation

\[ x_{tr} = x_{avg} + k \times \left( \frac{1}{n-1} \times \Sigma (x_i - x_{avg})^2 \right)^{1/2}, \]

where \( k = 3.5 \), \( x_{tr} \) – threshold level, \( x_{avg} \) – average value, \( x_i \) – enumeration of all values. The dispersion of the count rate was achieved by using standard deviation low for each data point. It was also found that the background fluctuation is not depend on Poisson distribution. The data reliability of the maximum detection distance was set at 0.001% (error rate), otherwise, no more than 1 false pulse per 1000 pulses. The sensitivity measurements of a radiation monitor system based on ZWO, BGO single crystal detectors under fast neutron irradiation were carried out in a spherical geometry [8]. We use \(^{238}\text{Pu-Be}\) with flux \(0.95 \times 10^5\) neutron×s⁻¹, Ø20×30 mm and 52 grams. The source is placed inside a lead ball Ø100 mm with a well Ø20 mm. The lead ball simultaneously attenuates the accompanying gamma radiation from the \(^{239}\text{Pu-Be}\) source [6,7]. We add an additional lead shield – 5 mm to protect the detector from background gamma radiation. The principle diagram of the monitoring system Fig. 1.

![Fig. 1. The principle diagram of the monitoring system](image1.jpg)

The minimum pulse width of the input signals is \(\sim 4\) ns. The signal accumulation time was defined by software and can be set from 10 ms and more.

In experiment of determination the maximum discovery distance the pulse accumulation time was about 1000 seconds, number of iterations – 1000, time of one sample accumulation 1 sec. Data was obtained in two mode with neutron source and without. Counting rate in single photon counting mode for ZWO Ø52×40 mm³ was \(\sim 3000\) sec⁻¹, in spectrometric mode \(\sim 40\) sec⁻¹. Principle of data accumulation was shown on Fig. 2. Where red line is calculated threshold, data below the red line is background fluctuation without source and data above threshold from \(^{239}\text{Pu-Be}\).

![Fig. 2. The data accumulation by using portal software (source \(^{239}\text{Pu-Be}\)). Red line is threshold](image2.jpg)
Structure diagram of measurement setup contain PMT R1307 Hamamatsu, ultra-low noise amplifier and was discussed previously [6] in our works. The signals from PMT (baseline noise fluctuation + electronic noise ~ 10 mV) was amplified by 6x stage preamplifier (band ~ 200 MHz, 60 dBm, output current on 50 Ohm 80 mA). In addition, output signal was trimmed by shorted delay line of 2 m length. The PMT voltage in single photon mode was 1250 – 1350 V, in spectrometric mode – from 650 V to 850 V. Signal slew rate in spectrometric mode was 1 ns, in “PORTAL” path ~ 2 ns.

RESULTS

In this work, we obtained the experimental values of the maximum detection distance “source-detector”. The counting speed of the recorded signals did not exceed the predefined threshold $x_T = x_{avg} + k \times ((n – 1) \times \Sigma (x_i - x_{avg})^2)$. The reliability of the measurements is about 1 false alarm per 1000 pulses for ZWO detectors and BGO. The measurements were carried out in two modes – in the spectrometric mode and the mode of counting single photons. The Table shows the results of measurements of the maximum detection distance $R$ (cm) for ZWO, BGO scintillators in the monitor, K1 coefficients — increase in the maximum detection distance, K2 – increase in sensitivity in the monitoring system, K3 – increase in the effective area of the detector compared to the spectrometric mode.

The sensitivity increment and the effective area of the detector were estimated according to the law of inverse squares.

Table.

| scintillator | $R$, cm ($\tau \sim 2$ ns) | $R$, cm ($\tau \sim 1$ us) | K1 (increase in detection distance) | K2 (increase in detection efficiency) | K3 (increase in detector window) |
|--------------|----------------------------|-----------------------------|------------------------------------|--------------------------------------|----------------------------------|
| ZWO          | 54                         | 39                          | 1.4                                | 1.9                                  | 1.9                              |
| BGO          | 38                         | 38                          | 1                                  | 1                                    | 1                                |

DISCUSSIONS AND CONCLUSIONS

The obtained values of the maximum detection distance of the “detector – radiation monitor” system during the registration of fast neutrons of a $^{239}$Pu-Be source for a ZWO single crystal detector can be explained as follows.

In the ZWO scintillator [6, 7] arise the additional CGQ which associated with the primary gamma quantum from the inelastic scattering reaction, which results in the case of their efficient isolation and registration (single photon counting mode) to increase the statistics of signals related to one input particle and, as a result, to increase the sensitivity of the system. At the same time, measurements carried out in the spectrometric mode on a ZWO scintillator did not give an increase in sensitivity, since CGQ (with low energies ~ 0.2-1 keV) are suppressed in this mode. CGQ registration is require high amplifier gain (~60 dBm) and single photon counting mode for PMT.

In the BGO scintillator of the indicated sizes [6, 7, 9, 10], CGQ are practically not observed, which is confirmed by the results of measuring the maximum detection distance of the monitor in different modes — photon counting and spectrometric. Thus, for BGO-type scintillators, an increase in statistics (photon counting mode) practically does not lead to an increase in sensitivity, since the conditions for the extraction of CGQ are not realized in BGO. It should be noted that in monitoring systems, in addition to signal statistics, the dispersion of the signal from neutrons plays an important role, which depends on the mechanism of neutron energy conversion in the scintillator, i.e. on the type of scintillator and reaction.

Thus, the use of the ZWO scintillator as part of a monitor recording signals in the photon-counting mode makes it possible efficiently using of a CGQ from the resonance capture of fast neutrons. That leads to increase the sensitivity of the monitoring system compared to the spectrometric mode by about 1.9 times and increasing the maximum detection distance by about 1.4 times.

REFERENCES

[1] M. Anellia, G. Battistoni, S. Bertolucci, C. Bini, P. Branchini, C. Curceanu, G. De Zorzi et al., Nucl. Inst. Meth. Phys. Res. A, 580, 368-372 (2007), https://doi.org/10.1016/j.nima.2007.08.005.

[2] L.L. Nagornaya, V.D. Ryzhikov, B.V. Grinyov, L.A. Piven’, G.M. Onyshchenko and E.K. Lysetska, in: Abstracts IEEE Nuclear Science Symposium, (Drezen, Germany, 2008), pp. 714-719. https://doi.org/10.1109/NSSMIC.2008.4775229.

[3] B. Grynyov, V. Ryzhikov, L. Nagornaya, G. Onishchenko, L. Piven’, US Patent No. 805624 (15 November 2011), http://patft.uspto.gov/netacgi/nph-Parser?Sect1=PTO2& Sect2=HITOFF&tp=1&u=%2Fntehmt%2FPTO%2Fsearch-adv.htm&r=1&f=G&l=50&d=PTXT&s1=%22805624%22.PN&OS=PN/.

[4] V.D. Ryzhikov, B.V. Grinyov, G.M. Onyshchenko, L.A. Piven, O.K. Lysetska, O.D. Opolonin, S.A. Kostioukevich and C.F. Smith, in: XVI SPIE Optical Engineering Proceedings, “Hard X-Ray, Gamma-Ray, and Neutron Detector Physics”, (IEEE, San Diego, 2014), https://doi.org/110.1117/12.2058185.
КЛЮЧОВІ СЛОВА: істотно пригнічені, збільшення максимальної відстані виявлення системи моніторингу в порівнянні зі спектрометричним режимом реєстрації, в детектора до швидких нейтронів. Використання механізму резонансного захоплення призводить до підвищення чутливості і можливість використання механізму резонансного захоплення нейтронів ядрами детектора ZWO для збільшення чутливості збільшення відстані виявлення джерела нейтронів детектором ZWO приблизно в 1.4 рази в порівнянні зі спектральним рахунку одиничних фотонів дозволяє збільшити ефективну чутливість детектора приблизно в 1.9 рази, що призводить до збільшення чутливості детектора і збільшенню відстані виявлення системи моніторингу. Низькоенергетичні КГК реєструвалися в режимі рахунку одиничних фотонов, також КГК, що виникають при резонансному захваті, використання резонансного захоплення приводить до зростання чутливості детектора і збільшення відстані виявлення системи моніторингу. Значення максимального розсіювання допустимих ядер, що випускаються в результаті резонансного захоплення, при обнаруженні ренгенових ліній дозволяє збільшити ефективну чутливість детектора приблизно в 1.9 рази.

ПОРІГ ВИЯВЛЕННЯ МАТЕРІАЛІВ ПОДЛУ СЦІНТИЛЯЦІЙНИМИ ДЕТЕКТОРАМИ ZnWO₄ ТА Bi₄Ge₃O₁₂

Г.М. Оніщенко1,2, В.Д. Рижіков2, І.І. Якіменко1, О.П. Щусь1

1Харківський Національний Університет імені В. Н. Каразіна, 61022, Харків, Україна
2Інститут сцинтилляційних матеріалів, НПЦ "Інститут монокристалів", НАН України, 61001, Харків, Україна

У даній роботі виміряна максимальна відстань виявлення 90Sr-Ве джерела швидких нейтронів детекторами на основі оксидних сцинтилляторів ZWO (ZnWO₄) і BGO (Bi₄Ge₃O₁₂). Вимірів відстані виявлення проводилось з використанням розробленої системи радіаційного моніторингу. Це дозволило оцінити величину вкладу низькоенергетичних каскадних гамма-квантов (КГК), що випускаються збудженими ядрами сцинтиллятора в відстань виявлення швидких нейтронів. Значення максимальної відстані виявлення детекторів отримані в режимі рахунку одиничних фотонів і склали 38 см для сцинтиллятора BGO розміром Ø40×40 мм, для сцинтиллятора ZWO розміром Ø52×40 мм – 54 см з надійністю не хуже 0.001. Результати експерименту для сцинтиллятора ZWO можуть бути пояснені реєстрацією, крім гамма-квантов з реакції непруженого розсіювання, також КГК, що виникають при резонансному захваті, використання резонансного захоплення нейтронів відносно ядра детектора ZWO збільшує відстань виявлення детектора і збільшенню відстані виявлення системи моніторингу. Низькоенергетичні КГК реєструвалися в режимі рахунку одиничних фотонов. Таким образом, при використанні в системі моніторингу оксидного сцинтиллятора ZWO (ZnWO₄) і збільшенню відстані виявлення системи моніторингу, в якому низькоенергетичні гамма-кванти розпадають компактядер, що утворюються в результаті резонансного захоплення, істотно пригнічені.

ПОРЯДОК ОБНАРУЖЕННЯ МАТЕРІАЛІВ ДЕЛЕНИЯ СЦІНТИЛЯЦІЙНИМИ ДЕТЕКТОРАМИ ZnWO₄ ТА Bi₄Ge₃O₁₂

В настоящий работе измерено максимальное расстояние обнаружения 90Sr-Ве источника быстрых нейтронов детекторами на основе оксидных сцинтилляторов ZWO (ZnWO₄) и BGO (Bi₄Ge₃O₁₂). Измерения расстояния обнаружения проводились с использованием разработанной системы радиационного мониторинга. Это позволило оценить величину вклада низкокинетических каскадных гамма-квантов (КГК), испускаемых возбужденными ядрами сцинтиллятора в расстояние обнаружения быстрых нейтронов. Значения максимального расстояния обнаружения детекторов получены в режиме счета единичных фотонов и составили 38 см для сцинтиллятора BGO размером Ø40×40 мм, для сцинтиллятора ZWO размером Ø52×40 мм – 54 см с надежностью не хуже 0.001. Результаты эксперимента на сцинтилляторе ZWO могут быть объяснены реєстрацією, крім гамма-квантов из реакции неупругого рассеяния, также КГК, что випускаются в результаті резонансного захоплення, використання резонансного захоплення нейтронів рамках ядра детектора ZWO збільшує відстань виявлення детектора і збільшенню максимальна відстань виявлення системи моніторингу в порівнянні зі спектральним режимом рахунку одиничних фотонів дозволяє збільшити ефективну чутливість детектора приблизно в 1.9 рази, що призводить до збільшення відстані виявлення детектора до швидких нейтронів. Результати використання механизму резонансного захоплення збільшують ефективну чутливість детектора і збільшують відстань виявлення системи моніторингу.

КЛЮЧОВІ СЛОВА: детектор, швидкі нейтрони, збуджені станні, лічильна ефективність, щільність ядерних рівнів

ПОРЯДОК ОБНАРУЖЕННЯ МАТЕРІАЛІВ ДЕЛЕНИЯ СЦІНТИЛЯЦІЙНИМИ ДЕТЕКТОРАМИ ZnWO₄ ТА Bi₄Ge₃O₁₂

В настоящей работе измерено максимальное расстояние обнаружения 90Sr-Ве источника быстрых нейтронов детекторами на основе оксидных сцинтилляторов ZWO (ZnWO₄) и BGO (Bi₄Ge₃O₁₂). Измерения расстояния обнаружения проводились с использованием разработанной системы радиационного мониторинга. Это позволило оценить величину вклада низкокинетических каскадных гамма-квантов (КГК), испускаемых возбужденными ядрами сцинтиллятора в расстояние обнаружения быстрых нейтронов. Значения максимального расстояния обнаружения детекторов получены в режиме счета единичных фотонов и составили 38 см для сцинтиллятора BGO размером Ø40×40 мм, для сцинтиллятора ZWO размером Ø52×40 мм – 54 см с надежностью не хуже 0.001. Результаты эксперимента на сцинтилляторе ZWO могут быть объяснены реєстрацією, крім гамма-квантов из реакции неупругого рассеяния, также КГК, что випускаются в результаті резонансного захоплення, використання резонансного захоплення нейтронів рамках ядра детектора ZWO збільшує відстань виявлення детектора і збільшенню максимальна відстань виявлення системи моніторингу в порівнянні зі спектральним режимом рахунку одиничних фотонів дозволяє збільшити ефективну чутливість детектора приблизно в 1.9 рази, що призводить до збільшення відстані виявлення детектора до швидких нейтронів. Результаты використання механизму резонансного захоплення збільшують ефективну чутливість детектора і збільшують відстань виявлення системи моніторингу.

КЛЮЧОВІ СЛОВА: детектор, швидкі нейтрони, збуджені станні, лічильна ефективність, щільність ядерних рівнів