

АНОТАЦІЯ

Якименко І. І. Дослідження механізмів взаємодії швидких нейтронів з речовиною монокристалічних та композитних оксидних сцинтиляторів. – Кваліфікаційна наукова праця на правах рукопису.

Дисертація на здобуття ступеня доктора філософії за спеціальністю 105 – Прикладна фізика та наноматеріали (Галузь знань 10 – Природничі науки). – Харківський національний університет імені В. Н. Каразіна Міністерства освіти і науки України, Харків, 2021.

Дисертацію присвячено дослідженням механізмів взаємодії швидких нейтронів з речовиною монокристалічних та композитних оксидних сцинтиляторів.

Створення компактних високочутливих детекторів для систем контролю нейтронного і гамма-нейтронного випромінення, для боротьби з незаконним транспортуванням радіоактивних матеріалів є актуальною задачею. Найбільш розповсюдженими є інспекційні системи, що базуються на ^3He -лічильниках нейтронів та мають незначну ефективність реєстрації $\sim 10\%$, обумовлену необхідністю сповільнення швидких нейтронів до теплових енергій. Дефіцит та висока вартість виготовлення ^3He стимулює пошук нових детекторів та нових принципів реєстрації швидких нейтронів. Попередні дослідження показали, що механізм непружного розсіяння $(n, n' \gamma)_{in}$ може бути використаний для реєстрації швидких нейтронів детекторами на основі важких оксидних сцинтиляторів. Ефективність реєстрації при цьому становила ~ 0.5 для детекторів малих розмірів ($\sim 10 \text{ мм}^3$). При цьому реєструвалися сигнали, тривалість яких формувалася (стала часу інтегрування) знаходилась в мікросекундному діапазоні. Це було обумовлено необхідністю зменшити вплив вторинних каскадних гамма-квантів, що

виникають в речовині сцинтилятора. Реєстрація імпульсів відгуку в мікросекундному діапазоні дозволила реєструвати лише високоенергетичні ($> 20\text{--}30$ кеВ) гамма-кванти з реакції непружного розсіяння швидких нейтронів $(n, n' \gamma)_{in}$, що виникають при розрядці збуджених одночасткових і колективних станів середніх і важких ядер сцинтиляторів. Було запропоновано для збільшення чутливості детектора швидких нейтронів використовувати каскади гамма-квантів, що генеруються не тільки в реакції непружного розсіювання, але і в реакціях резонансного і радіаційного захоплення. Швидкі нейтрони $^{239}\text{Pu}\text{--}\text{Be}$ джерела з максимальною енергією $E \leq 10$ МеВ в процесі розсіювання і уповільнення в речовині оксидного сцинтилятора з лінійними розмірами $\sim 40\text{--}50$ мм і більше в реакціях непружного і резонансного розсіювання, радіаційного захоплення проходять три енергетичних області: область непружного розсіяння в реакції $(n, n' \gamma)_{in}$ (~ 10 МеВ– 100 кеВ), область резонансного захоплення $(n, n' \gamma)_{res}$ (100 кеВ– 100 еВ) і область радіаційного захоплення (100 еВ – 0.025 кеВ). У цих реакціях збуджуються стани компаунд-ядер $(A + 1)$ з часом існування $\sim 10^{-14}$ с– 10^{-12} с, а стани кінцевих ядер (A) з часами існування від одиниць пікосекунд до десятків мікросекунд, а також можуть народжуватися затримані гамма-кванти γ_{del} , обумовлені блуканнями вторинних нейтронів з реакцій $(n, n' \gamma)_{in}$ і $(n, n' \gamma)_{res}$ в речовині сцинтилятора. Таким чином, відгук детектора на одну вхідну частинку (тобто швидкий нейтрон) являє собою суміш гамма-квантів і проміжних нейтронів, тому число зареєстрованих вторинних частинок (тобто гамма-квантів) детектором, може значно перевищувати 1. Це підтверджують данні з резонансного та радіаційного захоплення, а також данні по непружному розсіянню. Оскільки ядра, що входять до складу оксидних сцинтиляторів (W, Gd, Zn) мають значні значення перерізу взаємодії в резонансній області, $\sim 50\text{--}500$ барн, в той час як значення перерізу в непружній області складають

одиниці барн ($\sim 2\text{--}3$ барна), то реєстрація гамма квантів, пов'язаних з цими процесами, може істотно збільшити статистику подій, що припадають на один вхідний нейтрон і, як наслідок, підвищують ефективність реєстрації нейтронів. Такі процеси мають незначну енергію розрядки в інтервалі від одиниць еВ до сотень кеВ і часи існування, що лежать в інтервалі $\tau \sim 10^{-14}$ с– 10^{-5} с.

Таким чином, в реакції непружного розсіяння $(n, n' \gamma)_{in}$, нейтрон, що вилетів з ядра, має істотно меншу в порівнянні з початковою енергію, що суттєво підвищує в надалі ймовірність реакції резонансного захоплення $(n, n' \gamma)_{res}$ в області $\Delta E \sim 1\text{--}100$ кеВ та формування повторно вже нового компаунд-ядра $(A + 1)^*$. Зауважимо, що повторне утворення компаунд-ядра відбувається через часи порядку 0.1–10 мкс і більше для оксидних сцинтиляторів товщиною 4–5 см та обумовлене часовою затримкою нейтрона який сповільнюється на ядрах сцинтилятора.

Генерація високоенергетичних гамма-квантів з реакції $(n, n' \gamma)_{in}$ здійснюється, в основному, кінцевим ядром (A^*) . Проміжне компаунд-ядро $(A + 1)$, будучи високозбудженим і маючи високу щільність рівнів, випромінює, в основному, досить низькоенергетичні фотони, енергія яких буде лежати в області шумів. Однак, також експериментально спостерігається значний вихід миттєвих каскадних гамма-квантів середніх енергій, що припадають на один нейтрон ($\sim 50\text{--}80$ і більше) розрядки збуджених станів компаунд-ядер $(A + 1)$, що утворюються в реакціях $(n, n' \gamma)_{res}$ і $(n, n' \gamma)_{cap}$. Генерація високоенергетичних гамма-квантів у реакції $(n, n' \gamma)_{in}$ здійснюється, кінцевим ядром (A^*) . Проміжне компаунд-ядро $(A + 1)$ отримує середню енергію збудження $\sim S_n + E_{n_kin}$, і, після вильоту нейтрона, що зменшує енергію ядра на величину S_n , перетворюється в кінцеве ядро з енергією збудження, рівній кінетичної енергії налітаючого нейтрона. Кінцеве ядро випромінює, в

основному, досить високоенергетичні фотони, які впевнено реєструються трактом. Також експериментально можуть спостерігатися миттєві каскадні гамма-кванти дуже малих енергій, при розрядці збуджених станів компаунд-ядер ($A + 1$), що утворюються в реакції $(n, n' \gamma)_{in}$. Енергія цих гамма-квантів близька до шумового порогу тракту, кількість їх, є дуже незначною і може бути зареєстрована лише при дуже малих рівнях збудження кінцевого ядра, коли щільність ядерних рівнів стає низькою (збільшується енергія зняття збудження).

У разі захоплення нейтронів в резонансній області в реакції $(n, n' \gamma)_{res}$ високозбуджені стани (6–8 MeV) компаунд - ядер ($A + 1$) випромінюють каскади миттєвих гамма-квантів дуже малих енергій, оскільки при високо збуджених рівнях густина рівнів компаунд-ядер велика. Хоча енергія збудження кінцевого ядра при резонансному захопленні становить 10–100 кеВ і менше, при цьому щільність ядерних рівнів істотно нижче, ніж для випадку високо-енергетичних збуджень, відстані між рівнями в такому випадку можуть становити ~ 1 –10 кеВ і більше. Отже, в реакції $(n, n' \gamma)_{res}$ слід очікувати прояв низькоенергетичних гамма-квантів розрядки станів кінцевих ядер, які можуть бути зареєстровані лише при наявності чутливої відповідної апаратури.

Проведений аналіз нейтронних ядерних реакцій на основі термодинамічної моделі дозволив оцінити середню енергію збудження зіставних і кінцевих ядер, що входять до складу оксидних сцинтиляторів, уточнити енергію вторинних нейтронів. Також оцінювалася щільність рівнів і відстаней між рівнями при малих енергіях збудження кінцевих ядер. Ці оцінки підтверджують експериментальні результати, що вказують на існування гамма-квантів малих енергій (~ 0.1 –30 кеВ), що виникають в переходах легких

компаунд-ядер і кінцевих ядер. Крім того, на основі аналізу експериментальних даних з реакцій $(n, n' \gamma)_{in}$, $(n, n' \gamma)_{res}$ і $(n, \gamma)_{cap}$. На ядрах сцинтиляторів були уточнені кількості виходу вторинних гамма-квантів, що продукуються в цих реакціях, як відгук, на один первинний вхідний нейтрон.

Таким чином, реакція непружного розсіяння є відправною точкою, яка запускає каскадний процес утворення і розпаду збуджених станів ядер в досліджуваних кристалах. В процесі уповільнення непружного нейтрона, що вилетів з реакції $(n, n' \gamma)_{in}$, в досить протяжному оксидному сцинтиляторі, крім миттєвих гамма-квантів зі складеного ядра $(A + 1, Z)$, мають місце затримані гамма-кванти з дочірнього ядра (A, Z) з реакції $(n, n' \gamma)$ (на 1 вхідний нейтрон – кілька сотень і більше гамма-квантів) з енергією від одиниць MeV до десятка keV, відповідно. Фактично ланцюжок генетично пов'язаних у часі процесів породжує збуджені ядерні стани, при цьому затримка в часі виникнення вторинних гамма-квантів визначається як часом проходження вторинних нейтронів через сцинтилятор, так і часом існування самих збуджених ядерних станів. Затримка відгуку детектора від блукаючих в кристалі вторинних нейтронів та нейтронів з вторинних реакцій резонансного захоплення може сприяти кількісному збільшенню числа сигналів зареєстрованих детектором, що припадають на один вхідний нейтрон.

У порівнянні з гамма-квантами, що продукуються непружним розсіянням з реакції $(n, n' \gamma)_{in}$ каскадні гамма-кванти з реакції резонансного розсіяння $(n, n' \gamma)_{res}$ і радіаційного $(n, \gamma)_{cap}$ захоплення мають енергію до десятка keV ($\sim 0.1 - 30$ keV), тому їх реєстрація вимагає відповідного експериментального обладнання (особливо передпідсилювача). Ці гамма кванти утворюють генетично пов'язані ланцюжки сигналів, які можуть збільшувати статистику подій, породжуваних первинним швидким нейтроном у сцинтиляторі.

Практично часи існування збуджених станів знаходяться в інтервалі від одиниць наносекунд до десятків мікросекунд. При наявності відповідного малошумного широкопasmового тракту з великим коефіцієнтом підсилення, що дозволяє ефективно реєструвати як низькоенергетичні гамма-кванти розрядки ядерних станів з малими часами існування, так і гамма-кванти, що народжуються в захопленнях нейтронів, що сповільнюються, слід очікувати підвищення лічильної ефективності реєстрації та, відповідно, чутливості нейтронного детектора.

Завдання та мета роботи були визначені як: розробка моделі відгуку сцинтилятора для цілей пошуку та виготовлення нових детекторів швидких нейтронів, дослідження взаємозв'язку механізмів взаємодії швидких нейтронів з ядрами сцинтиляторів з метою виявлення генетичного зв'язку продуктів реакцій для підвищення ефективності реєстрації, виявлення результативних шляхів зменшення енергії швидких нейтронів в детекторі, розробка супутньої електроніки вимірювального тракту з метою реєстрації низькоенергетичних гамма-квантів із переходів, що збуджуються у реакціях взаємодії швидких нейтронів, виявлення механізмів генерації каскадів гамма-квантів в реакціях $(n, n' \gamma)_{in}$, $(n, n' \gamma)_{res}$, $(n, \gamma)_{res}$ та вторинних нейтронів.

Серед використаних методів дослідження варто підкреслити наступні підходи: вимірювання ефективності сцинтиляційних детекторів з використанням різних типів джерел (^{252}Cf , $^{239}\text{Pu-Be}$, ^{137}Cs); чисельні розрахунки відгуків детектора на основі розробленої моделі; варіація як ізотопного складу сцинтилятора так і об'єму детектора; застосування часової фільтрації імпульсного відгуку детектора (7 нс–1 мкс); застосування радіаційного монітору для експериментального визначення порогу виявлення джерел швидких нейтронів в онлайн режимі.

Новизна роботи полягає в наступних положеннях: встановлено генетичний взаємозв'язок механізмів взаємодії швидких нейтронів з ядрами сцинтиляторів з апаратним відгуком сцинтилятора; виявлено найбільш продуктивні механізми втрати енергії швидких нейтронів в речовині сцинтиляторів та шляхи генерації каскадних гамма квантів; виявлено зв'язок механізмів генерації каскадів гамма-квантів в реакціях $(n, n' \gamma)_{in}$, $(n, n' \gamma)_{res}$, $(n, \gamma)_{res}$ та вторинних нейтронів, компаунд ядрами та кінцевими ядрами; вперше використано генетичний зв'язок каскадів продуктів реакцій непружного, резонансного розсіяння та захвату швидких нейтронів на ядрах сцинтилятора ZWO, підтверджено патентом України; вперше створено новий високоефективний детектор швидких нейтронів ZWO ($ZnWO_4$) з використанням трьох механізмів $(n, n' \gamma)_{in}$, $(n, n' \gamma)_{res}$, $(n, \gamma)_{res}$. вперше створено новий детектор KDP (K_2PO_4) з високою селективністю до швидких нейтронів у порівнянні з гамма квантами; розроблено та створено новий швидкодіючий широкополосний передпідсилювач для реєстрації відгуку сцинтилятора та виділення вкладів механізмів взаємодії в однофотонному режимі реєстрації; розроблено та створено швидкодіючий радіаційний монітор для виявлення у неперервному режимі порогу виявлення джерела швидких нейтронів для досліджуваного сцинтилятора.

Резюмуючи результати вимірювань лічильної ефективності в одиницях імпульс* c^{-1} / нейтрон * c^{-1} з урахуванням трьох механізмів $(n, n' \gamma)_{in}$, $(n, \gamma)_{res}$ + $(n, n' \gamma)_{res}$ і $(n, \gamma)_{cap}$ склали 752 для ZWO, 532 для CWO ($CdWO_4$), 37 для GSO (Gd_2SiO_5) і 23 для BGO ($Bi_4Ge_3O_{12}$), похибка вимірювань 3-5%. Використаний в експериментах фотоприймач ФЕП Hamamatsu R1307, що працює в однофотонному режимі (напруга 1250 В) і створений малошумний широкополосний підсилювач з коефіцієнтом підсилення ~ 70 dB та швидкодією ~ 300 МГц. На формування сигналу детектора впливають такі

параметри ядер і атомів, що входять до складу сцинтиляторів, як величини перерізів непружного і резонансного розсіювання, щільність ядерних рівнів складових і кінцевих ядер в енергетичному інтервалі взаємодії, ширина резонансної області, часи висвічування сцинтиляторів. Використання однофотонної методики реєстрації гамма-квантів з збуджуваних в реакціях $(n, n' \gamma)_{in}$ одночасткових станів, низькоенергетичних гамма-квантів з реакції $(n, \gamma)_{res} + (n, n' \gamma)_{res}$ і реакції $(n, \gamma)_{cap}$ істотно збільшує кількість генетично пов'язаних подій в детекторі на один падаючий нейтрон і, як наслідок, збільшує лічильну ефективність і чутливість до виявлення нейтронів. Експериментальні результати цілком корелюють із запропонованою феноменологічною моделлю відгуку оксидного сцинтилятора до швидких нейтронів. Результати роботи будуть використані при розробці нових детекторів швидких нейтронів.

Створено підґрунтя для продовження досліджень механізмів взаємодії швидких нейтронів з речовиною монокристалічних та композитних оксидних сцинтиляторів. Розроблений програмно-апаратний комплекс оцінки відстані виявлення джерел радіаційного випромінення з заданою надійністю типу «Портал», що працює за розробленою методикою реєстрації швидких нейтронів є базою для експериментальної розробки систем моніторингу для контрольних-пропускних пунктів, контрольних радіаційних моніторів, перевірки якості створених детекторів.

Ключові слова: Детектор швидких нейтронів, ZWO, BGO, CWO, GSO, KDP, механізми взаємодії швидких нейтронів, ефективність реєстрації детектора, радіаційний монітор, швидкий передпідсилювач, ядерні рівні, модель відгуку сцинтилятора, режим лічення фотонів, збуджені рівні, гамма множинність.