РАЗВИТИЕ ФОТОЯДЕРНОГО МЕТОДА ОБНАРУЖЕНИЯ СКРЫТЫХ (N; C)-КОНЦЕНТРАЦИЙ С РЕГИСТРАЦИЕЙ НАВЕДЕННЫХ (¹²N; ¹²B)-АКТИВНОСТЕЙ

Л. З. Джилавян*

Институт ядерных исследований РАН, Москва

Представлен обзор исследований, посвященных развитию фотоядерного метода наружного обнаружения скрытых взрывчатых веществ и наркотических средств с использованием регистрации наведенных активностей короткоживущих радиоизотопов ¹²N и ¹²B. Рассматриваются основные аспекты этого метода: вовлеченные ядерные реакции; эмиссия γ -квантов, электронов и позитронов из облученных объектов при (¹²N; ¹²B)-распадах; вопросы радиационной безопасности; детекторы для регистрации (¹²N; ¹²B)-активностей на импульсных ускорителях электронов; модельные описания для попыток реализации метода.

An overview is given for the studies devoted to development of the photonuclear method for external detection of hidden explosives and narcotic drugs using registration of induced activities of the short-lived radioisotopes ¹²N and ¹²B. The main aspects of the method are considered: the involved nuclear reactions; emission of γ -quanta, electrons, and positrons from irradiated objects at (¹²N; ¹²B)-decays; radiation safety problems; detectors for registration of (¹²N; ¹²B)-activities at pulsed electron accelerators; model descriptions for attempts to realize the method.

PACS: 24.30.Cz; 25.20.-x

введение

Фотоядерный метод [1–5] был предложен для наружного обнаружения скрытых взрывчатых веществ и наркотических средств с использованием регистрации наводимых активностей короткоживущих радиоизотопов ¹²N (β^+ -распад, максимальная кинетическая энергия β -частиц $E_{\beta \max} \cong 16,3$ МэВ, период полураспада $T_{1/2} \cong 11,0$ мс [6]) и ¹²B (β^- -распад, $E_{\beta \max} \cong 13,4$ МэВ,

^{*}E-mail: dzhil@cpc.inr.ac.ru

 $T_{1/2} \cong 20,2$ мс [6]). Предполагается, что 12 N и 12 B образуются в течение импульсов пучка ускорителя электронов, а регистрация наведенных (12 N; 12 B)активностей проводится во временных интервалах между этими импульсами.

 12 N и 12 B почти уникальны среди тех радиоизотопов, которые имеют $T_{1/2} \approx 3-80$ мс и могут быть образованы в фотоядерных реакциях с порогами $E_{\gamma \, thr} \leqslant \sim 50$ МэВ и вылетом $\leqslant 3$ нуклонов из некоего стабильного изотопа-мишени, имеющего естественный изотопный состав $\eta_{is} \ge 1\%$ [2]. Значения $T_{1/2}$ для 12 N и 12 B привлекательны для желаемого существенного улучшения быстродействия фотоядерного обнаружения (N; C)-концентраций по сравнению с тем, что имеется в более традиционном активационном анализе с регистрацией (13 N; 11 C)-активностей от (γ, n)-реакций, для которых $T_{1/2}$ больше в $\sim 5 \cdot 10^4$ раз [6].

Оптимальная реализация рассматриваемого метода с довольно высокой чувствительностью зависит от ряда аспектов. Выполненные работы [3–5, 7–19] посвящены некоторым из таких аспектов. Результаты этих работ обсуждаются в данном обзоре.

1. ЯДЕРНЫЕ РЕАКЦИИ, ВОВЛЕЧЕННЫЕ В РАССМАТРИВАЕМЫЙ МЕТОД

Для анализа метода нужны данные об основных вовлеченных ядерных реакциях (и об (12 N; 12 B)-образующих фотоядерных реакциях, и о фоновых ядерных реакциях).

1.1. (12 N; 12 B)-образующие фотоядерные реакции. В указанном методе исходят из того, что (12 N; 12 B)-изотопы образуются в следующих основных фотоядерных реакциях:

$$\gamma + {}^{14}N \ (\eta_{is} \cong 99,63\,\%) \to {}^{12}N + 2n \ (E_{\gamma thr} \cong 30,6 \text{ M} \Im B) \ [6],$$
 (I)

$$\gamma + {}^{14}N \ (\eta_{is} \cong 99,63\%) \to {}^{12}B + 2p \ (E_{\gamma thr} \cong 25,1 M \Im B) \ [6],$$
 (II)

$$\gamma + {}^{13}C (\eta_{is} \cong 1,1\%) \to {}^{12}B + p \quad (E_{\gamma thr} \cong 17,5 \text{ M}\mathfrak{s}B) [6].$$
 (III)

Данные о сечениях и выходах этих основных (¹²N; ¹²B)-образующих фотоядерных реакций необходимы для анализа метода прежде всего. Такие данные были собраны, частично модельно рассчитаны и проанализированы в [13, 15, 18].

1.1.1. Сечения реакций (I)–(III). В [13] показано, что только для реакции (III) есть экспериментальные сечения реакции σ в зависимости от энергий фотонов E_{γ} вплоть до ≈ 30 МэВ с точностью, приемлемой для анализа метода. Эти данные представлены на рис. 1, где сплошная кривая — данные из [20], точки — из [21], вертикальные штрихи (без точек) — из [22].



Рис. 1. Сечения 13 С (γ, p) 12 В-реакции. Кривая — из [20]; точки — из [21]; штрихи — из [22]



Рис. 3. Сечения реакции 14 N $(\gamma, 2n)^{12}$ N [13]



Рис. 2. Сечения реакции 13 С $(\gamma, p){}^{12}$ В [13]



Рис. 4. Сечения реакции 14 N $(\gamma, 2p){}^{12}$ N [13]

Ограничения и отсутствие экспериментальных данных о сечениях реакций (III) и особенно (I), (II) заставляют рассматривать модельные расчеты этих сечений. Прежде всего в наших расчетах были использованы модели ядерных реакций TALYS [23] и EMPIRE [24]. Рассчитанные сечения показаны на рис. 2, 3, 4 для реакций (III), (I), (II) соответственно, где кривая *1* из [2]; *2* — из [25]; *3* — из [26]; *4* — результаты наших собственных расчетов из [13] согласно [23]; *5* — результаты наших собственных расчетов из [13] согласно [24]; *6* — экспериментальные данные для сечений реакции (III) из [22].

1.1.2. Выходы реакций (1)–(III). Спектр тормозных фотонов при всех углах из радиатора с атомным номером Z, радиационной длиной X_{0r} и толщиной dx_r есть

$$\frac{dN_{\gamma}(k,E,Z)}{dk}dk\,dx_r = N_e \frac{\rho_r dx_r}{M_r} N \frac{d\sigma_b(k,E,Z)}{dk}dk \equiv N_e \frac{dx_r}{X_{0r}} \frac{dn_{\gamma}(k,E,Z)}{dk}dk,$$
(1)

где k — энергия тормозного фотона; E и N_e — полная энергия (если не оговорено иное) каждого из падающих на радиатор электронов и их число; ρ_r и M_r — плотность и молекулярный вес материала радиатора; $N_A \cong 6,022 \cdot 10^{23} \text{ моль}^{-1}$ — число Авогадро; $(d\sigma_b(k, E, Z)/dk)$ — дифференциальное по энергии фотонов сечение образования тормозного излучения; $(dn_{\gamma}(k, E, Z)/dk) = (N_A \rho_r X_{0r}/M_r)(d\sigma_b(k, E, Z)/dk)$ — число образованных тормозных фотонов с энергиями от k до (k + dk), приведенное к одному электрону, падающему на элемент радиатора с его толщиной, измеряемой в единицах X_{0r} . Значения $k(dn_{\gamma}/dk)$ показаны на рис. 5 для трех представлений $(d\sigma_b(k, E, Z)/dk)$.



Рис. 5. Значения $k(dn_{\gamma}/dk)$ для вольфрама в зависимости от энергий фотонов k: I, 2, 3, 4, 5 — для T = 8, 15, 20, 30, 60 МэВ соответственно согласно [27] (сплошные кривые), [28] (штриховые кривые), приближению $(dn_{\gamma}/dk) = k^{-1}$ (штрихпунктирная прямая)

В работах с тормозными фотонами число актов некой фотоядерной реакции определяется не прямо сечением реакции, а интегральными величинами: выходами $Y(E - \mu)$ или сечениями на эквивалентный квант $\sigma_q(E - \mu)$, которые получаются с помощью сверток распределений сечений $\sigma(k)$ с распределениями тормозных фотонов по их энергиям k при различных E (здесь μ — полная энергия покоящегося электрона, $(E - \mu) \equiv T$ — кинетические энергии электронов). Для мишеней, практически полностью охватывающих поток тормозных фотонов, образуемых в элементе толщины радиатора (dx_r/X_{0r}) , имеем

$$Y(E-\mu)\frac{dx_{r}}{X_{0r}} = \frac{dx_{r}}{X_{0r}} \int_{0}^{E-\mu} \frac{dn_{\gamma}(k, E, Z)}{dk} \sigma(k) \, dk.$$
(2)

В рамках приближения $(dn_{\gamma}/dk) = k^{-1}$ имеем

$$Y(E-\mu)\frac{dx_{r}}{X_{0r}} \approx \frac{dx_{r}}{X_{0r}} \int_{0}^{E-\mu} \frac{1}{k} \sigma(k) \, dk \equiv \frac{dx_{r}}{X_{0r}} \, \sigma_{-1}(E-\mu). \tag{3}$$

Для сечения на эквивалентный квант $\sigma_q(E-\mu)$ имеем

$$\sigma_q(E-\mu) = \frac{\int_{0}^{E-\mu} \frac{dn_{\gamma}(k, E, Z)}{dk} \sigma(k) \, dk}{\frac{1}{E-\mu} \int_{0}^{E-\mu} \frac{dn_{\gamma}(k, E, Z)}{dk} k \, dk}.$$
(4)

На рис. 6, 7, 8 для реакций 68 Zn (γ, p) , 14 N $(\gamma, 2p)$, 14 N $(\gamma, 2n)$ соответственно показаны модельно рассчитанные $\sigma(E_{\gamma})$ (a), Y(T) (б), $\sigma_q(T)$ (в).



Рис. 6. $\sigma(E_{\gamma})$ (*a*), Y(T) (б) и $\sigma_q(T)$ (*s*) Рис. 7. $\sigma(E_{\gamma})$ (*a*), Y(T) (б) и $\sigma_q(T)$ (*s*) для 68 Zn (γ, p) -реакции [18] для 14 N $(\gamma, 2p)$ -реакции [18]



Рис. 8. $\sigma(E_\gamma)$ (a), Y(T) (б) и $\sigma_q(T)$ (в) для $^{14}{\rm N}(\gamma,2n)$ -реакции [18]

При этом Y и σ_q даны для тех же представлений тормозного излучения, как и на рис. 5. Данные для реакции 68 Zn (γ, p) (у которой $\sigma(E_{\gamma})$) весьма компактное и узкое) добавлены, чтобы отделить роль формы изохромат используемых представлений спектров тормозного излучения от роли, связанной с широкими распределениями $\sigma(E_{\gamma})$ как для реакции 14 N $(\gamma, 2p)$, так и для 14 N $(\gamma, 2n)$ особенно.

Имеются только два измерения интегральных характеристик для реакций ¹⁴N(γ , 2n) при $E \approx$ 120 МэВ [29] и ¹⁴N(γ , 2p) при $E \approx$ 90 МэВ [30] (см. об этом в [13]). Но из-за экспериментальных трудностей в обоих случаях достигнутые точности довольно низкие.

1.1.3. Обсуждение данных и рассмотрение новых измерений для реакций (1)–(III). Несмотря на все попытки создать реалистичные модели ядерных реакций, до сих пор даже наиболее развитым из них не удается корректно описывать некоторые существенные реакции с вылетом из ядра даже только одного или двух нуклонов. Например, было показано, что TALYS-предсказания недооценивают экспериментальные сечения и выходы реакции ⁶⁸Zn(γ , p) примерно в несколько раз, и приходится для

лучшего согласия добавлять большой вклад, связанный с учетом изоспинового расщепления электрического дипольного гигантского резонанса в ⁶⁸Zn [18]. Для реакции ¹³C(γ , p)¹²B имеются даже более серьезные недооценки при использовании моделей TALYS и EMPIRE (примерно на порядок величины [13]). В этом смысле особенно интересно, что в недавней статье [31] также сообщается о больших недооценках рассчитанных сечений для реакции ¹²C(n, p)¹²B в широком диапазоне ядерных возбуждений, полученных, в частности, с использованием EMPIRE и TALYS, по сравнению с измерен-

ными сечениями. Интегральные измеренные характеристики сечений реакций ${}^{14}N(\gamma, 2n)$ [29] и ${}^{14}N(\gamma, 2p)$ [30], несмотря на их намного худшую точность, также подтверждают указанные недооценки.

Нужны новые измерения сечений реакций $^{14}{\rm N}(\gamma,\,2n)^{12}{\rm N}$ и $^{14}{\rm N}(\gamma,\,2p)^{12}{\rm B}$ (даже только интегральные!). По этой причине в [13] было уделено значительное внимание деталям методик, использованных в предшествующих экспериментальных исследованиях сечений и выходов этих реакций. Анализ доступных данных показывает, что нужны измерения указанных сечений (и соответствующих выходов) при энергиях от порогов реакций и по крайней мере до $E \sim 60$ МэВ. В [15] рассмотрены два варианта таких измерений, основанных на детектировании (¹²N и ¹²B)-активностей с регистрацией самих β-частиц или вторичных тормозных и/или аннигиляционных γ-квантов, образуемых *β*-частицами в облученных мишенях. Первый активационный вариант был использован в [29] с регистрацией β^+ -частиц с энергиями ~ 8 МэВ с помощью магнитного спектрометра, имеющего низкую эффективность регистрации. Интересно рассмотреть для регистрации *β*-частиц телескопические детекторы, которые могут иметь как высокую эффективность регистрации, так и высокую способность подавления фона. При этом, несмотря на указанные недостатки моделей реакций (I)-(III), все же представляется, что они содержат важные эвристические указания.

1.2. Вовлеченные фоновые ядерные реакции. Данные реакции рассмотрены в [7, 8]. При одинаковых условиях кроме реакций (I)–(III) могут проходить и иные фотоядерные реакции с образованием радиоизотопов.

В реакциях (IV), (V) образуются радиоизотопы с $T_{1/2},$ близкими к $T_{1/2}$ для $^{12}{\rm N}$ и $^{12}{\rm B}$:

$$\begin{split} \gamma + {}^{16}\text{O} \ (\eta_{\text{is}} &\cong 99,76 \ \%) \to {}^{13}\text{B} + 3p \\ (E_{\gamma \,\text{thr}} &\cong 43,2 \text{ M} \Rightarrow \text{B}; \ \beta^-; \ T_{1/2} &\cong 17,4 \text{ mc}) \ [6], \qquad \text{(IV)} \\ \gamma + {}^{16}\text{O} \ (\eta_{\text{is}} &\cong 99,76 \ \%) \to {}^{13}\text{O} + 3n \\ (E_{\gamma \,\text{thr}} &\cong 52,1 \text{ M} \Rightarrow \text{B}; \ \beta^+; \ T_{1/2} &\cong 8,6 \text{ mc}) \ [6]. \qquad \text{(V)} \end{split}$$

Радиоизотопы с $T_{1/2} \sim 0.1$ с образуются, по крайней мере, в реакциях (VI), (VII):

$$\begin{split} \gamma + {}^{12}\mathrm{C} \ (\eta_{\mathrm{is}} &\cong 98,9 \,\%) \to {}^{9}\mathrm{Li} + 3p \\ (E_{\gamma \,\mathrm{thr}} &\cong 46,8 \,\,\mathrm{M} \ni \mathrm{B}; \ \beta^{-}; \ T_{1/2} &\cong 178,3 \,\,\mathrm{mc}) \ [6], \quad (\mathrm{VI}) \\ \gamma + {}^{12}\mathrm{C} \ (\eta_{\mathrm{is}} &\cong 98,9 \,\%) \to {}^{9}\mathrm{C} + 3n \\ (E_{\gamma \,\mathrm{thr}} &\cong 53,1 \,\,\mathrm{M} \ni \mathrm{B}; \ \beta^{+}; \ T_{1/2} &\cong 126,5 \,\,\mathrm{mc}) \ [6]. \quad (\mathrm{VII}) \end{split}$$



Рис. 9. $\sigma(E_n)$ для реакции 12 С $(n, p){}^{12}$ В [32]

Насколько известно, нет экспериментальных данных для сечений реакций (IV)–(VII). Модельно рассчитанные значения этих сечений можно найти в [26].

Полученные в фотоядерных реакциях нейтроны претерпевают рассеяние, уменьшение кинетической энергии E_n и нейтрон-ядерные реакции на их пути в зале облучений.

Среди нейтрон-ядерных реакций есть реакции под действием быстрых нейтронов, в частности реакция с обра-

зованием ¹²В (см. на рис. 9 сечение этой реакции [32]):

$$n + {}^{12}C (\eta_{is} \cong 98,9\%) \to {}^{12}B + p (E_{n \text{ thr}} \cong 12,6 \text{ M} \Im B) [6].$$
 (VIII)

Но в основном нейтрон-ядерные реакции приводят к радиационному захвату медленных (если не тепловых) нейтронов, дающих фон вторичных γ -квантов, спадающий с ростом времени t после импульса пучка. В частности, может идти реакция, дающая ¹²В:

$$n + {}^{11}\text{B}(\eta_{\text{is}} \cong 80,1\%) \rightarrow {}^{12}\text{B} + \gamma'$$

(при $E_n = 0$ выделяемая энергия $\approx 3,4$ МэВ) [6]. (IX)

Малые доли бора в типичных проверяемых объектах позволяют полагать, что фон от реакции (IX) не слишком препятствует использованию метода. Фон от реакции (VIII) должен быть малым, так как, во-первых, доля первичных нейтронов с E_n больше порога $E_{n \text{ thr}}$ для этой реакции мала и, во-вторых, такие нейтроны с подавляющей вероятностью претерпевают рассеяние, приводящее к уменьшению их энергии E_n до значений ниже порога $E_{n \text{ thr}}$.

2. ЭМИССИЯ γ -КВАНТОВ, ЭЛЕКТРОНОВ И ПОЗИТРОНОВ ИЗ ОБЛУЧЕННЫХ ОБЪЕКТОВ ПРИ РАСПАДАХ ¹²N и ¹²B, ОБРАЗОВАННЫХ В ЭТИХ ОБЪЕКТАХ

Важный аспект рассматриваемого фотоядерного метода — потоки и спектры γ -квантов, электронов и позитронов, испускаемых из облученных объектов при распадах ¹²В и ¹²N, образованных в этих объектах. В [14, 17] были рассчитаны потоки и спектры указанных испускаемых частиц в зависимости от E (здесь E — энергии γ -квантов или кинетические энергии электронов или позитронов). Спектры кинетических энергий E_{β} первичных β -частиц (электронов или позитронов, испускаемых из объектов на один акт распада

¹²В и ¹²N соответственно) показаны на рис. 10 [6]. Исходя из этих спектров первичных β -частиц были рассчитаны с использованием программ Geant4 [33] и MCNP5 [34] энергетические спектры электронов, позитронов и γ -квантов (от тормозного излучения и аннигиляции), испущенных из выбранных объектов. Проверка этих расчетов, проведенная путем сравнения результатов, полученных обеими программами [33,34], выявила хорошее согласие. Здесь представлены результаты, полученные с



Рис. 10. Спектры первичных β -частиц при распадах: $I = {}^{12}$ В; $2 = {}^{12}$ N [14, 18]

помощью Geant4, так как в этом случае объем интересующих нас данных более полный. В [14, 17] для удобства расчетов были использованы упрощенные объекты. Тем не менее представляется, что с ними удалось выявить важные характерные черты рассматриваемой задачи. Объекты состоят из однородной эквиатомной смеси H, C, N, O и имеют форму сферы с радиусом r = 10 см и плотностями $\rho = 0.05; 0.10; 0.25; 0.50; 0.69; 1.00; 1.50; 2.00; 3.00 г \cdot см^{-3}$. Рассчитаны (см. на рис. 11 соответственно *a*; *б*; *в*; *z*; *d*; *e*; *ж*; *з*; *u*) спектры испускаемых из таких сфер γ -квантов, электронов и позитронов при распадах

Рассчитанные со статистической точностью более $\sim 1~\%$ значения интегральной величины $(N_\gamma/N_\beta), (N_{e-}/N_\beta), (N_{e+}/N_\beta)$ для γ -квантов, электронов, позитронов с $E>E_{\rm min}$, испущенных из сферы, имеющей радиус $r=10~{\rm cm}$ и состоящей из однородной эквиатомной смеси H, C, N, O с полной плотностью $\rho=0,69~{\rm r}\cdot{\rm cm}^{-3}$, в зависимости от $E_{\rm min}$ при распадах $^{12}{\rm B}$ и $^{12}{\rm N}$ в центре этой сферы

E_{\min} ,	¹² B			¹² N		
МэВ	(N_{γ}/N_{β})	(N_{e-}/N_{β})	(N_{e+}/N_{β})	(N_{γ}/N_{β})	(N_{e-}/N_{β})	(N_{e+}/N_{β})
0,00	0,3814578	0,0010093	0,0000126	2,468848	0,0072187	0,0118297
0,25	0,1990509	0,0009283	0,0000125	2,164563	0,0062107	0,0117489
0,50	0,0989225	0,0007261	0,0000117	1,573884	0,0034808	0,0111043
0,75	0,0665512	0,0005533	0,0000104	0,243521	0,0028984	0,0100267
1,00	0,0492056	0,0004176	0,0000090	0,194912	0,0024299	0,0087455
1,25	0,0380543	0,0003171	0,0000078	0,161552	0,0020535	0,0074139
1,50	0,0302233	0,0002432	0,0000065	0,136965	0,0017451	0,0061288
1,75	0,0244405	0,0001892	0,0000054	0,117972	0,0014892	0,0049419
2,00	0,0200064	0,0001489	0,0000045	0,102769	0,0012748	0,0038908
2,25	0,0165220	0,0001184	0,0000037	0,090288	0,0010947	0,0029823
2,50	0,0137331	0,0000946	0,0000030	0,079838	0,0009426	0,0022122
2,75	0,0114710	0,0000758	0,0000025	0,070937	0,0008123	0,0015829
3,00	0,0096112	0,0000609	0,0000020	0,063269	0,0007013	0,0010878



Рис. 11. Спектры γ -квантов, электронов и позитронов из сфер при ¹²В- и ¹²N-распадах [14, 17] в центрах сфер с ρr ($\Gamma \cdot cm^{-2}$): *a*) 0,5; *б*) 1,0; *в*) 2,5; *г*) 5,0; *д*) 6,9; *e*) 10,0; ж) 15,0; *з*) 20,0; *u*) 30,0

¹²В или ¹²N в центрах сфер. На рис. 11, a-u можно наблюдать эволюцию этих спектров в зависимости от роста ρr .

Для условий, имеющих место для случая, когда $\rho = 0,69 \text{ г}\cdot\text{сm}^{-3}$, (см. рис. 11, ∂), в качестве примера в таблице даются рассчитанные на одну β -частицу при распаде ¹²В или ¹²N в центре сферы интегральные количества γ -квантов, электронов и позитронов, испущенных из сферы с энергиями E, превышающими значения E_{\min} , указанные в таблице.

Рассчитанные значения (N_{γ}/N_{β}) для γ -квантов с энергиями $E > E_{\min}$, полученные в этих случаях в зависимости от ρr , показаны на рис. 12, a, δ , s, e и ∂ для значений $E_{\min} = 0; 0.25; 1,00; 2,00; 2,50$ МэВ соответственно в сопоставлении с подгоночными функциями $f = A[1 - \exp(-a_1\rho r)] \exp(-a_2\rho r)$.



Рис. 12. (N_{γ}/N_{β}) для γ -квантов с $E > E_{\min}$ из сфер при ¹²В-распадах в зависимости от ρr [18] при E_{\min} (МэВ): *a*) 0; δ) 0,25; s) 1,00; ϵ) 2,00; δ) 2,50



Рис. 13. Параметры A (*a*), a_1 (*б*), a_2 (*в*) в зависимости от E_{\min} [18]

На рис. 13 показаны параметры A, a_1 , a_2 этих функций f, найденные с помощью метода наименьших квадратов, в зависимости от E_{\min} . В функциях fмножитель $A[1 - \exp(-a_1\rho r)]$ имеет насыщение в зависимости от ρr и приблизительно равен количеству γ -квантов, образованных β -частицами вдоль их пути в веществе этих объектов, тогда как множитель $\exp(-a_2\rho r)$ приблизительно описывает поглощение таких γ -квантов. Отметим, что по своему характеру $f(\rho r)$ близки к тем, которые измерены в [35] для γ -квантов от электронов с $E \approx 17$ МэВ.

3. ВОПРОСЫ РАДИАЦИОННОЙ БЕЗОПАСНОСТИ В ОБСУЖДАЕМОМ МЕТОДЕ

Существенным аспектом рассматриваемого метода является его радиационная безопасность, так как распределения сечений используемых в нем фотоядерных реакций вынуждают выбирать энергии падающих электронов около 50–60 МэВ. Но при этих энергиях, как уже упоминалось выше, и иные радиоизотопы могут эффективно образовываться. Это особенно важно при проверке багажа авиапассажиров, что и изучалось в [9,11].

В [9] в качестве примера было рассмотрено облучение единицы багажа, имеющей поверхностную плотность $\rho X = 3.7$ г \cdot см⁻², молекулярную

массу M, химический $\eta_{\rm chem}$ и изотопный $\eta_{\rm is}$ составы, для $N_e = 10^{12}$ электронов в каждом импульсе ускорителя и полного числа таких импульсов $n_{\rm imp} = 150$, когда они бомбардируют радиатор толщиной в радиационных длинах $(X_r/X_{0r}) = 0,1$. В рамках приближения (3) (см. п. 1.1.2 для случая, когда по всей толщине радиатора $\sigma_{-1}(E-\mu) \approx {\rm const} \equiv \sigma_{-1\,{\rm satur}}$) для полной наведенной активности a(t=0), образуемой под действием тормозного излучения из радиатора в результате некой фотоядерной реакции в облученной единице багажа для образуемого радиоизотопа, имеющего период полураспада $T_{1/2}$, к окончанию (т. е. к t = 0) относительно короткого времени облучения τ в условиях, когда можно пренебречь ослаблением потока тормозных фотонов и в радиаторе, и в багаже (см., например, [36]), получаем

$$a(t=0) \approx N_e n_{\rm imp} \left(\frac{X_r}{X_{0r}}\right) \sigma_{-1\,\rm satur} N_A \left(\frac{\eta_{\rm chem} \eta_{\rm is} \rho X}{M}\right) \left(\ln 2/T_{1/2}\right).$$
(5)

Если при этом a(t=0) измеряется в с⁻¹, $\sigma_{-1 \text{ satur}}$ — в мб, M — в г·моль⁻¹, $T_{1/2}$ — в с, то

$$u(t=0) \approx 2.3 \cdot 10^{10} \left(\frac{\eta_{\text{chem}} \eta_{\text{is}} t \sigma_{-1 \text{ satur}}}{M T_{1/2}} \right)$$

Результаты таких оценок надо сравнивать с нормами радиационной безопасности [37]: пределами годового поступления в организм (ПГП), минимально значимой активностью (МЗА), минимально значимой удельной активностью (МЗУА). Оцененные a(t = 0) не превышают ПГП для всех радиоизотопов из [37] (они имеют $T_{1/2} \ge 1,01$ сут). Для некоторых радиоизотопов с $T_{1/2} < 1,01$ сут в [37] есть данные о МЗА и/или МЗУА, и можно попытаться использовать их для оценок. Так, для ¹⁵О из реакции ¹⁶О(γ , n) оценки наведенных активностей дают вполне удовлетворительные уровни. Более сложная ситуация имеется для радиоизотопов, для которых в [37] нет данных ни о МЗА, ни о МЗУА. Например, для ¹¹С из реакции ¹²С(γ , n). Мы попытались использовать в этом случае данные из [37] о МЗА для ¹⁴С также для ¹¹С. Если указанная выше единица багажа содержит 20 кг ¹²С, то оцененная a(t = 0) выше, чем такая МЗА, в ~ 5 раз, но уже a(t = 48 мин) соответствует этой МЗА. Результаты наших последующих экспериментальных исследований [11] подтвердили корректность приведенных выше оценок.

4. ДЕТЕКТОРЫ ДЛЯ РЕГИСТРАЦИИ (¹²N; ¹²B)-АКТИВНОСТЕЙ НА ИМПУЛЬСНЫХ УСКОРИТЕЛЯХ ЭЛЕКТРОНОВ

В [19] были рассмотрены проблемы регистрации вторичных γ -квантов, электронов и позитронов, испускаемых из облученных объектов при распадах 12 N и 12 B, образованных в этих объектах, благодаря реакциям (I)–(III) на импульсных ускорителях электронов. Известны попытки использования для этих

целей сцинтилляционных детекторов [2, 7] и водяных черенковских детекторов [10, 12]. Во всех этих случаях использовались фотоэлектронные умножители (ФЭУ). В [19] использовался NaI-монокристалл (100 мм × \emptyset 150 мм) с ФЭУ-49Б, и при этом рассматривалась роль изменений во времени мод работы этого детектора. Эта роль изучалась для закрытых залов облучений на импульсных ускорителях электронов (как предполагается, при проверке авиабагажа).

Электроны на ускорителе за время их импульса τ образуют много тормозбыстрых фотонейтронов. фотонов И Такой «квазимгновенный ных $(\gamma; n)$ -фон» может «ослеплять» ФЭУ в детекторах (¹²N; ¹²B)-активностей. А фотонейтроны опасны еще и потому, что они, как уже упоминалось, «гуляют» по залу облучений, замедляются и испытывают радиационные захваты, образуя еще и растянутые во времени t после импульса пучка $(n; \gamma)$ -фоны [7]. При этом предполагается, что $\tau \sim 10^{-6} - 10^{-5}$ с, а время между импульсами пучка ~ 40 мс. В [19] для ФЭУ-49Б применялся управляемый делитель напряжения питания, а также использовались сигналы, связанные с радиоактивными у-источниками, светоэмиссионными диодами (LED), фоном на линейном ускорителе электронов ЛУЭ-8-5 [38] при $\tau \approx 3.5$ мкс, $E \approx 8$ МэВ и различных импульсных токах электронов I вплоть до $I \approx 30$ мА. Пучковые измерения на ЛУЭ выявили два характерных типа отклика ФЭУ на фоновую засветку. Тип 1 — «линейная засветка» при малых I до некоторого I_{max} , когда форма импульса с анода ФЭУ повторяет форму I, близкую к прямоугольной с $\tau \approx 3.5$ мкс. Но при более высоких I при их росте у функции отклика ФЭУ начинает «выедаться» ее конечная по времени часть, пока она не преобразуется при дальнейшем росте I в тип 2 — «нелинейную засветку» с коротким импульсом вблизи переднего фронта импульса пучка. Дальнейшие измерения проводились с LED-имитациями пучка и с радиоактивными γ -источниками. При этом оказалось, что $I_{\rm max}$ соответствует энерговыделению



Рис. 14. Осциллограммы анодных импульсов ФЭУ-49Б при «нелинейной засветке»: *а*) без управляющих сигналов; *б*) с управляющими сигналами

в NaI ~ 100 MэB. Осциллограммы импульсов с анода ФЭУ-49Б в режиме «бесконечного послесвечения» приведены на рис. 14 (лучи 3) для «нелинейной засветки». Схема управления делителем напряжения значительно улучшает работу ФЭУ, при этом уменьшается время восстановления его рабочего режима (здесь до ≈ 120 мкс).

5. МОДЕЛЬНЫЕ ОПИСАНИЯ ДЛЯ ПОПЫТОК РЕАЛИЗАЦИИ МЕТОДА

Возможность реализации метода определяется совокупностью относительно сложных процессов, зависящих от ряда факторов (по крайней мере, для части из которых разнообразные оперативные экспериментальные модификации затруднительны). Адекватные модельные описания здесь весьма полезны. В [16] дано основанное на моделировании по методу Монте-Карло с помощью программы MCNP5 [34] описание эксперимента [2] с графитовой мишенью (плотностью $\rho \cong 2,3 \ r \cdot cm^{-3}$, толщиной по пучку 5 см, Ø6 см, положением — 1 м от пола), а в [17] для проверки были также даны для тех же условий независимые оценки двух существенных характеристик метода.

При этом в модели [16]: $N_e \cong 1.25 \cdot 10^{11}$; радиатор отсутствует; размеры зала облучений 4 × 6 × 6 м; «игольчатый» пучок электронов падает вертикально на мишень по оси ее диска; стены, пол и потолок зала из бетона известного состава имеют одинаковую толщину — 1 м; четыре пластических сцинтиллятора (толщиной $h \cong 6 \text{ см} \times \emptyset 12$ см на расстоянии R = 0.5 м от центра мишени), погруженные в свинцовые «стаканы» с толщинами стенок и днищ 10 см; спектры тормозных фотонов рассчитывались MCNP5; сечения реакции ${}^{13}C(\gamma, p){}^{12}B$ взяты из [22]. В [16] получено на один падающий электрон с T = 50 МэВ число ¹²В-ядер, образуемых в мишени $N_{^{12}\text{B}} \approx 1.39 \cdot 10^{-6}$, что соответствует числу ядер ¹²В 1,74 · 10⁵ на импульс ускорителя. В [17] независимая оценка дала даже слишком хорошо согласующееся значение $N_{^{12}\mathrm{B}} pprox 1.4 \cdot 10^{-6}$ и полное число $^{12}\mathrm{B}$ -распадов на один падающий электрон в первую миллисекунду после импульса пучка $n_{12B} \approx 4.8 \cdot 10^{-8} \text{ мc}^{-1}$. Рассчитанная в [16] для этого случая ожидаемая скорость счета в детекторе при регистрации γ -квантов и электронов от 12 В-распадов при $E_{\min} = 10$ кэВ составляет $N(t) \approx 3.9 \exp(-t/29)$, где t — в миллисекундах.

Характеры *t*-зависимостей регистрируемого детектором эффекта от 12 В-распадов и фонов в зале облучения от нейтронов и вызванных последними γ -квантов, а также соотношения между этими зависимостями очень важны для понимания возможностей рассматриваемого метода. Результаты соответствующих модельных расчетов [16] представлены на рис. 15. Наблюдается корреляция между *t*-зависимостями плотностей потоков фоновых нейтронов (кривая 3) и вызванных ими γ -квантов (кривая 1) в зале облучений, а также явное доминирование эффекта от 12 В-распадов (кривая 2) над фоном

(кривая 1). На рис. 16 показано сравнение экспериментальных данных [2] (точки) с расчетными [16] (кривая 2). Кривая 1 на рис. 16 есть фит N(t) указанных экспериментальных точек:

$$N(t) = (0,32 \pm 0,03) + (11,4 \pm 1,4) \exp\left(-\frac{t}{2,54 \pm 1,4}\right) + (3,7 \pm 0,2) \exp\left(-\frac{t}{33 \pm 2,3}\right).$$
 (6)

В [17] использовано предположение, что при ¹²В-распадах в графитовой мишени и пластических сцинтилляторах образование γ -квантов и их поглощение (когда их толщины ρr — в г · см⁻²) описываются теми же подгоночными функциями f, которые приведены в разд. 2 для (H, C, N, O)-мишеней.



Рис. 15. Потоки нейтронов и γ -квантов в зале облучений, а также в детекторе [16] в зависимости от времени t после импульса пучка



Рис. 16. Скорости счета ¹²В-распада. Точки — из [2]. Кривые — из [16]: I — фит N(t) (см. (6) для эффекта + фона); 2 — модельный расчет только для эффекта

Отсюда для $E_{\gamma \min} = 0$ и $\rho r = 6,9$ г · см⁻² величина $a_2 \approx 0,345$ см²·г⁻¹ в описании поглощения γ -квантов позволяет согласно [36] определить «эффективную» энергию в γ -спектре $E_{\gamma \text{ eff}} \approx 25$ кэВ. Можно также приблизительно оценить ν_{γ} — плотность потока γ -квантов, регистрируемых такими пластиковыми сцинтилляционными детекторами в первую миллисекунду после импульса пучка на один электрон, падающий на указанную графитовую мишень, при β -распадах образованных в ней ¹²В-ядер:

$$\nu_{\gamma} \approx n_{^{12}\text{B}} \frac{N_{\gamma}}{N_{\beta}} \frac{1}{4\pi R^2} \left[1 - \exp\left(-a_2 h \rho_{\text{pl}}\right) \right] \approx 0.52 \cdot 10^{-12} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{mc}^{-1}, \quad (7)$$

где $n_{^{12}\mathrm{B}}\approx 4.8\cdot 10^{-8}~\mathrm{mc}^{-1};~(N_{\gamma}/N_{\beta})\approx 0.38$ (см. таблицу для $E_{\mathrm{min}}=0);$ R=50 см; множитель в квадратных скобках описывает интегральную часть γ -квантов при $E_{\mathrm{min}}=0$, которые поглощаются пластиковым сцинтиллятором толщиной h=6 см и плотностью $\rho_{\mathrm{pl}}\cong 1.05~\mathrm{r\cdot cm}^{-3}$. Эта грубая оценка разумно согласуется с $\nu_{\gamma}\approx 0.8\cdot 10^{-12}~\mathrm{cm}^{-2}\cdot\mathrm{mc}^{-1}$ из [16].

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Созданная модель для попытки реализовать для графитового диска рассматриваемый метод и независимые оценки для такого случая дают довольно хорошее согласие с экспериментом. Это является сильным аргументом в пользу адекватности количественного описания вовлеченных в метод процессов. Соотношения между эффектом и фонами, связанными с образуемыми нейтронами и γ -квантами от захватов этих нейтронов атомными ядрами, получены. Кроме того, получена важная характеристика для детектирования ¹²В-активности, а именно $E_{\gamma \text{ eff}}$.

К сожалению, достигнутые при этом скорости счета малы. Но имеются значительные резервы для большей чувствительности в обнаружении скрытых концентраций углерода. В эти резервы входят: увеличение N_e для каждого импульса пучка электронов (на 1–1,5 порядка величины, как у известных импульсных ЛУЭ), использование подходящих радиаторов, установка более эффективных детекторов, «охватывающих» большой полный телесный угол. Вклады в фон от фотонейтронов можно ослабить примерно на два порядка величины (как это было показано в наших модельных оценках, касающихся использования «ловушки пучка» [16]). Предполагается, что можно сделать значительно более крутым *t*-спад фона от фотонейтронов при покрытии всех поверхностей стен, пола и потолка в зале облучений слоем материалов с большими сечениями захвата нейтронов. ⁶Li-защита сцинтилляционных детекторов и использование дейтерированных органических сцинтилляторов также могут помочь. Дальнейшее развитие метода для

детектирования N-концентраций требует новых измерений сечений и выходов реакций $^{14}N(\gamma, 2p)$ и $^{14}N(\gamma, 2n)$. Для импульсных мониторов электронов и γ -квантов также нужно дальнейшее развитие. Понятно, что возможности этих улучшений в рассматриваемом методе требуют дальнейшего модельного и экспериментального изучения.

Автор благодарен своим соавторам по отдельным цитируемым работам: А.И.Кареву, В.Г.Раевскому, Ю.Н.Покотиловскому, Б.С.Ишханову, В.И.Шведунову, С.С.Белышеву, А.М.Лапику, А.В.Русакову и др.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- 1. Alvarez L. W. Nitrogen Detection. The USA Patent US 4756866. July 12, 1988. 10 p.
- Knapp E. A., Moler R. B., Saunders A. W., Trower W. P. Direct Imaging of Explosives // Appl. Rad. Isotopes. 2000. V. 53. P.711–716.
- Dzhilavyan L. Z., Karev A. I., Raevsky V. G. Detection and Identification of Hidden Explosives in Photonuclear Detection Systems // Bull. Russ. Acad. Sci.: Phys. 2011. V. 75. P. 257–262.
- Карев А. И., Раевский В. Г., Джилавян Л. З., Бразерс Л. Дж., Вилхайд Л. К. Способ идентификации скрытых взрывчатых веществ и наркотиков. Патент РФ RU 2444003 C1. 27.02.2012. Бюл. № 6. 10 с.
- Karev A. I., Raevsky V. G., Dzhilavyan L. Z., Brothers L. J., Wilhide L. K. Methods of Detection and Identification of Carbon- and Nitrogen-containing Materials. The USA Patent US 8,582,712 B2. Nov. 12, 2013. 11 p.
- 6. Chu S. Y. F., Ekström L. P., Firestone R. B. The Lund/LBNL Nuclear Data Search. 1999. http://nucleardata.nuclear.lu.se/toi/.
- Dzhilavyan L. Z. Aspects of Photonuclear (¹²N; ¹²B)-Activity Detection of Explosives Taking into Account Background Photoneutrons // Bull. Russ. Acad. Sci.: Phys. 2009. V. 73. P. 799–805.
- 8. Dzhilavyan L. Z., Karev A. I. Laptev V. D., Raevsky V. G. Production of the Short-Lived Isotopes ¹²N and ¹²B in the ¹⁴N(γ , 2n), ¹⁴N(γ , 2p), and ¹³C(γ , p) Reactions // Proc. of the XII Intern. Seminar on Electromagnetic Interactions of Nuclei (EMIN-2009). Moscow, 2010. P. 75–85.
- Dzhilavyan L. Z., Karev A. I. Radiation Safety of the Photonuclear Method for Detecting Hidden Explosives in Examining Airline Passengers' Luggage // Bull. Russ. Acad. Sci.: Phys. 2011. V. 75. P. 1557–1561.
- Карев А. И., Раевский В. Г., Джилавян Л. З., Лаптев В. Д., Пахомов Н. И., Шведунов В. И., Рыкалин В. И., Бразерс Л. Дж., Вилхайд Л. К. Устройство для обнаружения скрытых взрывчатых веществ и наркотических средств. Патент РФ RU 2442974 C1. 20.02.2012. Бюл. № 5. 9 с.
- Karev A. I., Raevsky V. G., Cherepnya S. N., Dzhilavyan L. Z., Belyshev S. S., Ermakov A. N., Ishkhanov B. S., Khankin V. V., Pakhomov N. I., Shvedunov V. I., Berlyand V. A. Radiation Safety of Luggage Inspected for Explosive Materials by Photonuclear Detectors in Airports // Bull. Russ. Acad. Sci.: Phys. 2014. V. 78. P. 452–455.

- Karev A. I., Raevsky V. G., Dzhilavyan L. Z., Laptev V. D., Pakhomov N. I., Shvedunov V. I., Rykalin V. I., Brothers L. J., Wilhide L. K. Device for Detection and Identification of Carbon- and Nitrogen-Containing Materials. The USA Patent: US 8,681,939 B2. March 25, 2014. 16 p.
- Achakovskiy O. I., Belyshev S. S., Dzhilavyan L. Z., Pokotilovski Yu. N. Cross Sections of the Reactions ¹⁴N(γ, 2n)¹²N, ¹⁴N(γ, 2p)¹²B, and ¹³C(γ, p)¹²B // Bull. Russ. Acad. Sci.: Phys. 2016. V. 80. P. 572–578.
- Belyshev S. S., Dzhilavyan L. Z., Pokotilovski Yu. N. Emission of γ-Quanta, Electrons, and Positrons upon the Decay of ¹²N and ¹²B Produced in Characteristic Targets // Bull. Russ. Acad. Sci.: Phys. 2016. V. 80. P. 566–571.
- Dzhilavyan L.Z. About Yield Measuring for the Reactions ¹⁴N(γ, 2n)¹²N and ¹⁴N(γ, 2p)¹²B // Proc. of the XIV Intern. Seminar on Electromagnetic Interactions of Nuclei (EMIN-2015). Poster Reports. M., 2016. P. 12–15.
- 16. *Dzhilavyan L. Z., Pokotilovski Yu. N.* Model Description of Photonuclear ${}^{13}C(\gamma, p){}^{12}B$ Activation Detection of Carbon // Phys. Part. Nucl. Lett. 2017. V. 14. P. 726–731.
- Belyshev S. S., Dzhilavyan L. Z., Lapik A. M., Pokotilovski Yu. N., Rusakov A. V. Characteristics of the Photonuclear ¹³C(γ, p)¹²B Activation Detecting for Carbon // Bull. Russ. Acad. Sci.: Phys. 2019. V. 83. P. 449–457.
- 18. Belyshev S. S., Dzhilavyan L. Z., Stopani K. A. Representations of Bremsstrahlung Spectra and the Corresponding Yields of Photonuclear Reactions // Ibid. P. 458–464.
- Dzhilavyan L. Z., Lapik A. M., Rusakov A. V. Time Operation Mode of Scintillation Detectors for Measuring the Induced Activity of ¹²B and ¹²N at Pulsed Electron Accelerators // Ibid. P. 474–478.
- 20. Cook B. C. Photodisintegration of C¹³ // Phys. Rev. 1957. V. 106. P. 300-314.
- 21. Denisov V. P., Kulikov A. V., Kul'chitskii L.A. Cross Section for the Reaction ${}^{13}C(\gamma, p){}^{12}B$ // Sov. Phys. JETP. 1964. V. 19. P. 1007–1008.
- Zubanov D., Sutton R. A., Thompson M. N., Jury J. W. ¹³C(γ, p) Cross Section // Phys. Rev. C. 1983. V. 27. P. 1957–1966.
- 23. TALYS-1.6. http://www.talys.eu/.
- 24. Herman M. et al. EMPIRE-3.1 Rivoli. User's Manual. 2012.
- 25. Hunt A. W., Harmon J. F., Stoner J. An Analysis of the VFCT Detector System. Idaho Accelerator Center. Idaho State Univ., Pocatello, Idaho, USA. 83209-8263. 35 p.
- 26. Koning A. J. et al. TENDL-2013 Nuclear Data Library. Gamma Sub-Library. ftp://ftp.nrg.eu/pub/www/talys/tendl2013/gamma_html/gamma.html. 2013.
- Seltzer S. M., Berger M. J. Bremsstrahlung Spectra from Electron Interactions with Screened Atomic Nuclei and Orbital Electrons // Nucl. Instr. Meth. B. 1985. V. 12. P. 95–134.
- Schiff L. I. Energy-Angle Distribution of Thin Target Bremsstrahlung // Phys. Rev. 1951. V. 83. P. 252–253.
- Panofsky W. K. H., Reagan D. The Reaction ¹⁴N(γ, 2n)¹²N // Phys. Rev. 1952. V. 87. P. 543.
- Komar A. P., Krzhemenek Ya., Yavor I. P. Photodisintegration of Nitrogen // Nucl. Phys. 1962. V. 34. P. 551–561.
- Žugec P. et al. Measurement of the ¹²C(n, p)¹²B Cross Section at n_TOF at CERN by In-Beam Activation Analysis // Phys. Rev. C. 2014. V. 90. P. 021601.

- Rimmer E. M., Fisher P. S. Resonances in the (n, p) Reaction on ¹²C // Nucl. Phys. A. 1968. V. 108, P. 567–576.
- 33. GEANT-4. Version: geant4 9.5.0 (Dec. 2, 2011). Physics Reference Manual.
- 34. http://mcnp.lanl.gov/
- 35. *Lanzl L. H., Hanson A. O. Z* Dependence and Angular Distribution of Bremsstrahlung from 17-MeV Electrons // Phys. Rev. 1951. V. 83. P. 959–974.
- 36. *Немец О. Ф., Гофман Ю. В.* Справочник по ядерной физике. Киев: Наук. думка, 1975. 414 с.
- Нормы радиационной безопасности (НРБ-99). СП-2.6.1.758-99. М.: Минздрав РФ, 1999. 27 с.
- Nedorezov V. G., Ponomarev V. N., Solodukhov G. V. Accelerator Complex for Fundamental Researches on Electron Linac LUE-8-5 // Book of Abstracts of Intern. Conf. "Nucleus-2018", Saint Petersburg, 2018. P. 214.