

С413Г

В-928

1809/2-76

СООБЩЕНИЯ  
ОБЪЕДИНЕННОГО  
ИНСТИТУТА  
ЯДЕРНЫХ  
ИССЛЕДОВАНИЙ

ДУБНА



10/v-76

14 - 9446

В.Я.Выропаев

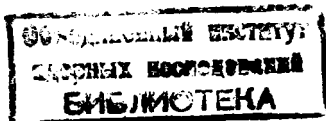
ИССЛЕДОВАНИЕ АКТИВАЦИИ  
РЕЗОНАНСНЫМИ НЕЙТРОНАМИ  
В ГРАФИТОВОМ ЗАМЕДЛИТЕЛЕ  
С ИСПОЛЬЗОВАНИЕМ  
ФОТОНЕЙТРОНОВ МИКРОТРОНА

1976

14 - 9446

В.Я. Выропаев

ИССЛЕДОВАНИЕ АКТИВАЦИИ  
РЕЗОНАНСНЫМИ НЕЙТРОНАМИ  
В ГРАФИТОВОМ ЗАМЕДЛИТЕЛЕ  
С ИСПОЛЬЗОВАНИЕМ  
ФОТОНЕЙТРОНОВ МИКРОТРОНА



Как отмечалось в работе <sup>/1/</sup>, организация активационного анализа в значительной мере определяется физическими установками, с помощью которых он осуществляется. В данной работе рассматривается вопрос использования ускорителей электронов в нейтронно-активационном анализе для решения определенных аналитических задач. Источниками нейтронов являются атомные реакторы, тормозные мишени ускорителей заряженных частиц и изотопные источники. Каждый из этих источников имеет определенную сферу приложения, но до последнего времени ускорители как источники нейтронов не получили должного распространения в практике активационного анализа. Однако широкое внедрение в науку и технику малогабаритных циклических ускорителей электронов - микротронов, разработанных в ИФП АН СССР под руководством проф. С.П.Капицы <sup>/2/</sup>, ставит вопрос об исследовании микротронов как источников нейтронов для аналитических целей.

Этот вопрос изучался в <sup>/3/</sup>: рассматривался выход фотонейтронов из различных конверторов при двух значениях энергий электронов с использованием обычной воды в качестве замедлителя. В данной работе также изучены различные конверторы нейтронов, но уже с использованием в качестве замедлителя графита, а также рассмотрен вопрос об активации резонансными нейтронами. Дело в том, что при активации тепловыми нейтронами различных природных объектов наведенная активность образцов определяется в основном такими макрокомпонентами, как натрий, калий, марганец, железо, медь, цинк и др. Экранировав облучаемые образцы кадмием или бором от тепловой компоненты спектра нейтронов, можно

значительно снизить активацию вышеназванных элементов тепловыми нейтронами, не повлияв значительно на активацию элементов, имеющих резонансный захват надтепловых нейтронов, но существенно улучшив качество спектрометрической информации при инструментальном методе анализа. Далее, используя в качестве замедлителя вместо обычной воды графит, экспериментально можно выбрать такой вариант расположения образцов относительно конвертора нейтронов, что будет иметь место спектр нейтронов, максимально обеспечивающий активацию резонансными нейтронами. Это объясняется различной замедляющей способностью воды и графита <sup>/4/</sup>.

### Экспериментальное оборудование

В качестве источника фотонейтронов был взят микротрон Лаборатории ядерных реакций с энергией электронов около 15 МэВ /рис. 1/. В качестве конверторов исследовались бериллий, свинец, цирконий и уран, а в качестве тормозной мишени - танталовая пластина толщиной 1 мм. Для измерения интегрального выхода нейтронов из конверторов применялся классический метод марганцевой ванны <sup>/5/</sup> /рис. 2/ с концентрацией по марганцу 40 г/л.

Для калибровки выхода нейтронов служил источник нейтронов <sup>252</sup>Cf, имеющий во время проведения эксперимента выход нейтронов  $1,54 \cdot 10^8$  нейтронов/с. Ванна использовалась также при изучении активации золота, когда замедлителем являлась вода. По данным непосредственных измерений, на поверхности марганцевой ванны утечка нейтронов составляла менее одного процента. На рис. 3 показана графитовая кладка, представляющая собой куб размером 70x70x70 см, а также схема расположения детекторов в ней. В качестве детекторов служили золотые фольги, упакованные в кадмиевые экраны толщиной 0,5 мм. Размеры детектора: диаметр 15 мм, толщина 10 мкм, вес 30 мг. Измерения спектров активированных фольг проводились на Ge(Li)-детекторе объемом 44 см<sup>3</sup> с разрешением 2,8 кэВ по линии 662 кэВ и эффективностью регистрации по  $E_\gamma = 412$  кэВ /для

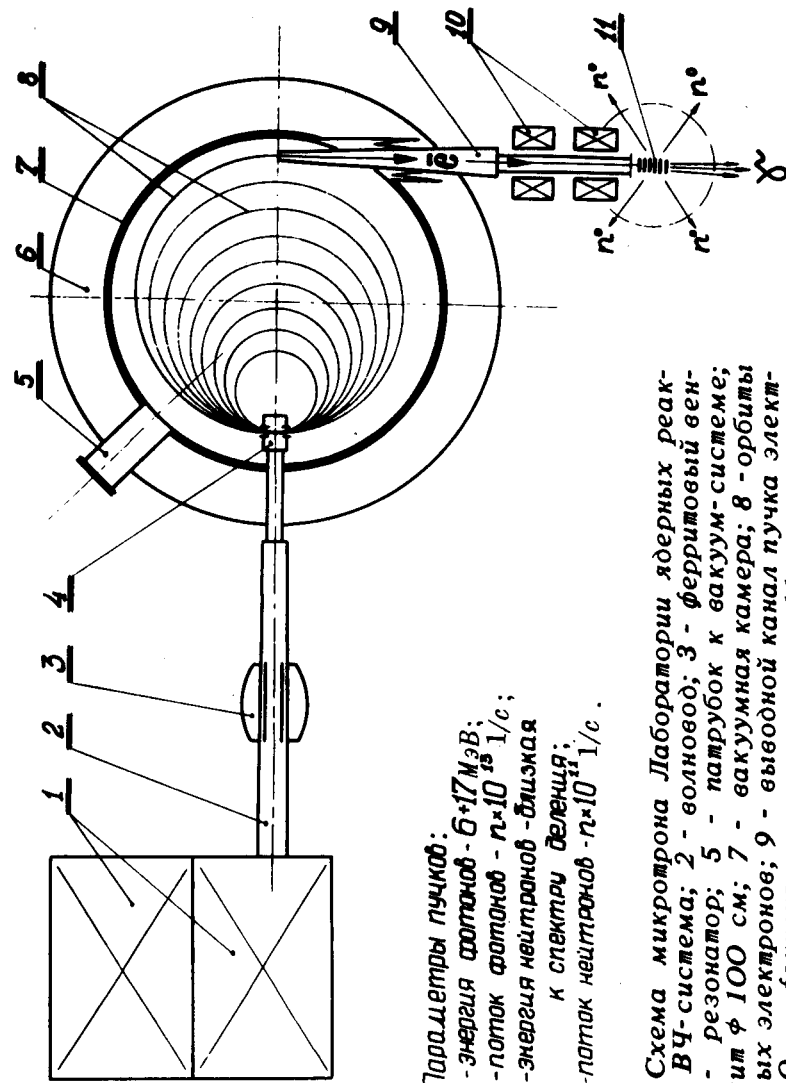


Рис. 1. Схема микротрона Лаборатории ядерных реакций. 1 - ВЧ-система; 2 - волновод; 3 - ферритовый венгиль; 4 - магнит; 5 - резонатор; 6 - патрубков к вакуум-системе; 7 - магнит  $\phi$  100 см; 8 - вакуумная камера; 9 - орбиты ускоряемых электронов; 10 - выводной канал пучка электронов; 11 - фокусирующие магниты; 12 - тормозная мишень.

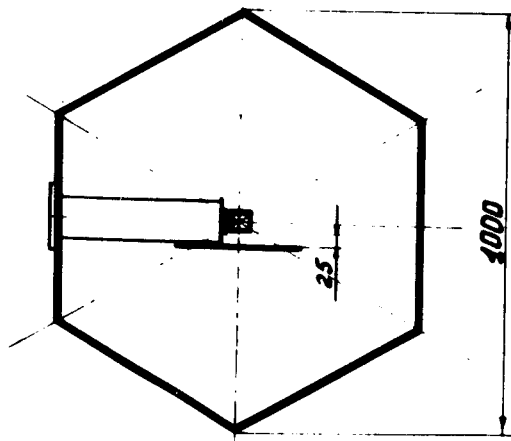
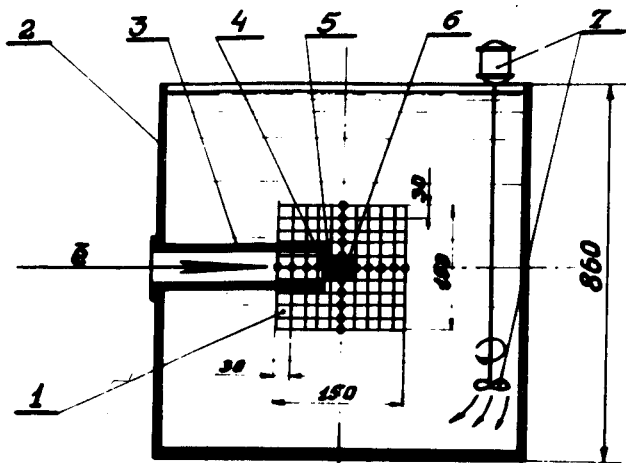


Рис. 2. Марганцевая ванна. 1 - cassa с детекторами; 2 - корпус; 3 - вводной канал, 4 - окно из алюминия толщиной 20 мкм; 5 - тормозная мишень; 6 - конвертор нейтронов; 7 - мешалка с электроприводом.

$^{198}\text{Au}$  /, равной 3,2%. Набор и обработка информации проводились на малой ЭВМ ТПА по программе "Юпитер-16" /6/. Все приведенные ниже экспериментальные данные

по выходу фотонейтронов как при измерениях на марганцевой ванне, так и при активации золотых фольг в воде и в графите нормированы на интенсивность пучка электронов, равную 1 мкА, и время облучения 1 ч.

**Проведение экспериментов**

**А. Измерение интегрального выхода нейтронов**

После облучения нейтронами раствора марганца в течение 1 ч как эталонным источником нейтронов  $^{252}\text{Cf}$ , так и фотонейтронами от конверторов из марганцевой ванны пипеткой отбиралось пять проб из различных по площади и глубине мест.

Пробы переносились в стеклянные бюксы равно диаметра, и производился набор информации по линии изотопа  $^{56}\text{Mn}$ ,  $E_\gamma = 847$  кэВ, в течение 20 мин. Полученные интенсивности пиков нормировались во времени на конец облучения. Расхождение в величинах интенсивностей по пяти пробам составляло не более 5%. "Охлаждение" марганцевой ванны после очередного часового облучения составляло не менее суток, т.е.  $10 T_{1/2}$  изотопа  $^{56}\text{Mn}$  /  $T_{1/2} = 2,58$  ч/. Результаты эксперимента представлены в таблице.

|                               | ЭТАЛОН            | конверторы нейтронов       |                            |                            |                            |                            |
|-------------------------------|-------------------|----------------------------|----------------------------|----------------------------|----------------------------|----------------------------|
|                               | $\text{Cf-252}$   | $\text{Be}$                | $\text{Zr}$                | $\text{Pb}$                | $\text{U}_{\text{ест}}$    | $\text{Pb}$                |
| РАЗМЕРЫ<br>КОНВЕРТОРОВ,<br>ММ | d-4<br>l-6        | d-50<br>l-100              | d-50<br>l-50               | d-50<br>l-50               | d-50<br>δ-3                | d-50<br>δ-3                |
| ВЫХОД,<br>n/сек·4π            | $1,54 \cdot 10^8$ | $2,0 \cdot 10^9$<br>(±0,1) | $3,4 \cdot 10^8$<br>(±0,1) | $2,1 \cdot 10^9$<br>(±0,1) | $1,3 \cdot 10^9$<br>(±0,1) | $7,6 \cdot 10^8$<br>(±0,1) |

Интегральный выход фотонейтронов на микротроне ЛЯР ОИЯИ при  $E_e = 14 \div 15$  МэВ,  $i_e = 1$  мкА

**Б. Исследование активации золота резонансными нейтронами в графитовом замедлителе**

На рис. 2,3 дана схема расположения золотых фольг при проведении эксперимента. В плоскости как по оси X, так и по оси Y располагалось по 11 детекторов, при этом по оси X изучалась активация золота по продольному, а по оси Y по поперечному сечению конверторов. Минимальное расстояние от поверхности конвертора до фольги по центральной оси Z составляло 2,5 см. Для строгой фиксации фольги, упакованные в кадмий толщиной 0,5 мм, располагались в гнездах кассы, изготовлен-

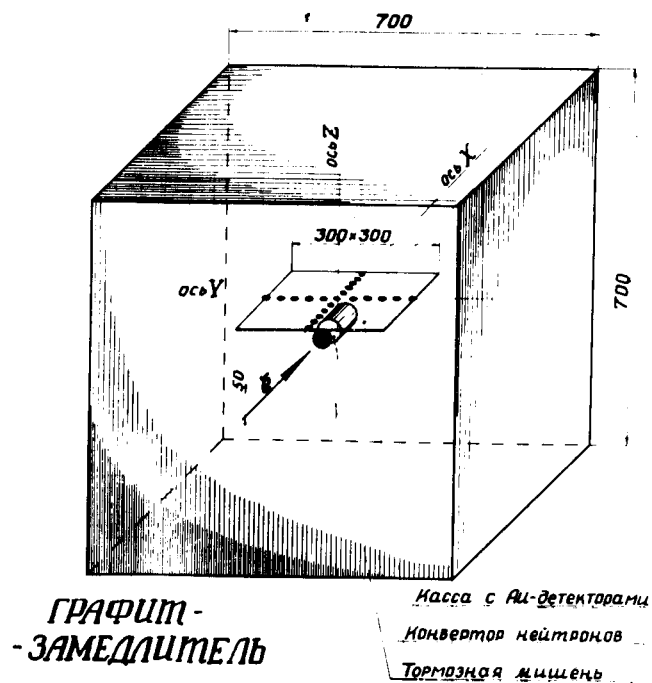


Рис. 3. Графитовая кладка и схема расположения кассы с детекторами, конвертора нейтронов и тормозной мишени.

ной из листового органического стекла толщиной 3 мм. Смена конверторов и кассы производилась без нарушения графитовой кладки. Танталовая тормозная мишень располагалась вплотную к торцовой поверхности нейтронных конверторов. Результаты экспериментов представлены на рис. 4 /активация по оси X / и рис. 5 /активация по оси Y /.

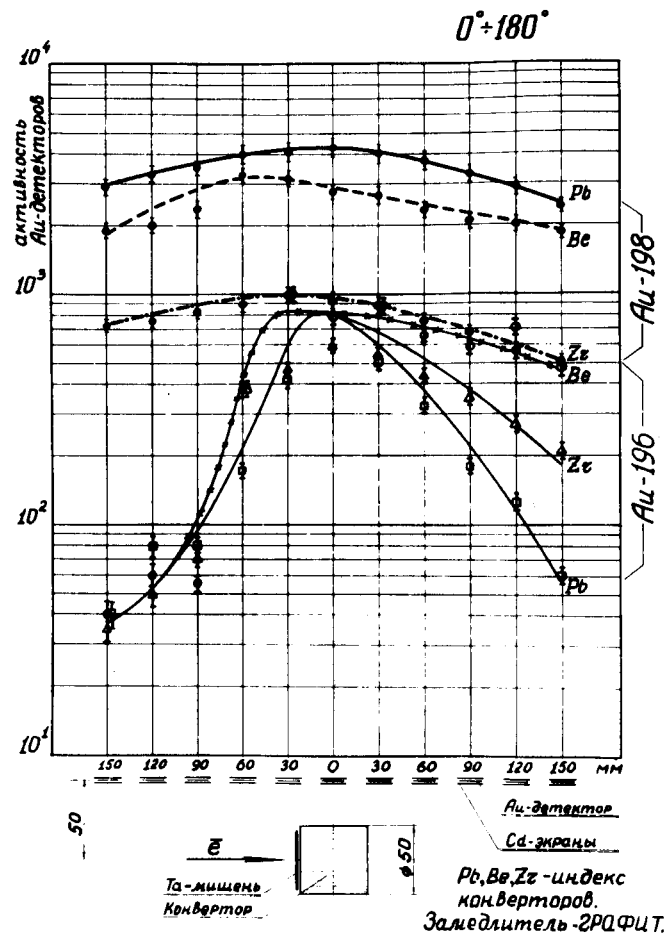


Рис. 4. Активация Au-детекторов вдоль оси пучка в зависимости от толщины графита для различных конверторов.

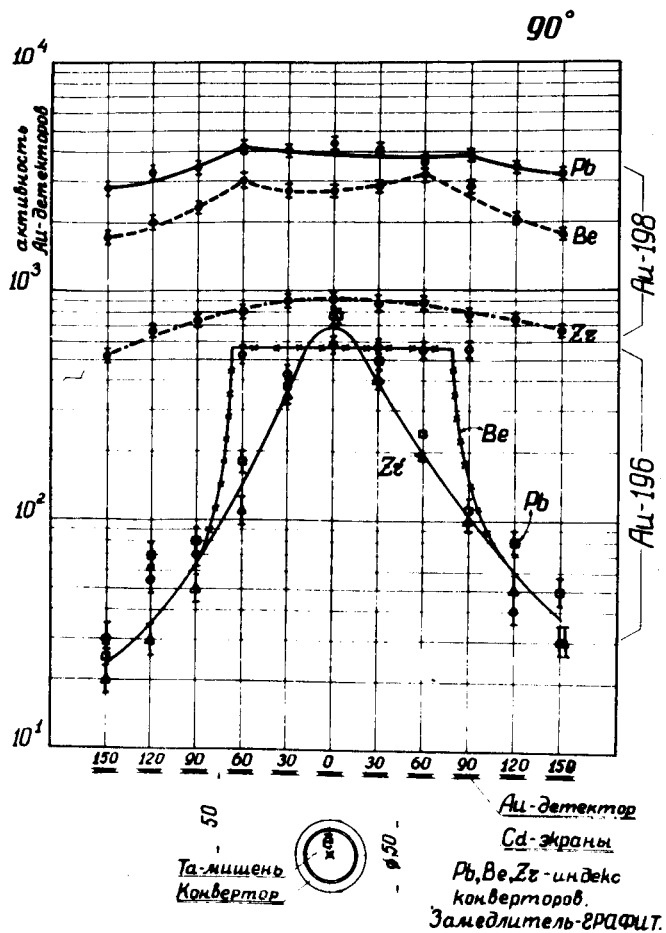


Рис. 5. Активация Au-детекторов перпендикулярно оси пучка в зависимости от толщины графита для различных конверторов.

В. Исследование сравнительной активации золота резонансными нейтронами в графитовом и водяном замедлителях

Активация золота как в графите, так и в воде проводилась с использованием бериллиевого конвертора. Гео-

метрия облучения как в графите /рис. 3/, так и в воде /рис. 2/ соблюдалась строго одинаковой по осям X, Y и Z. Результаты экспериментов представлены на рис. 6 и 7.

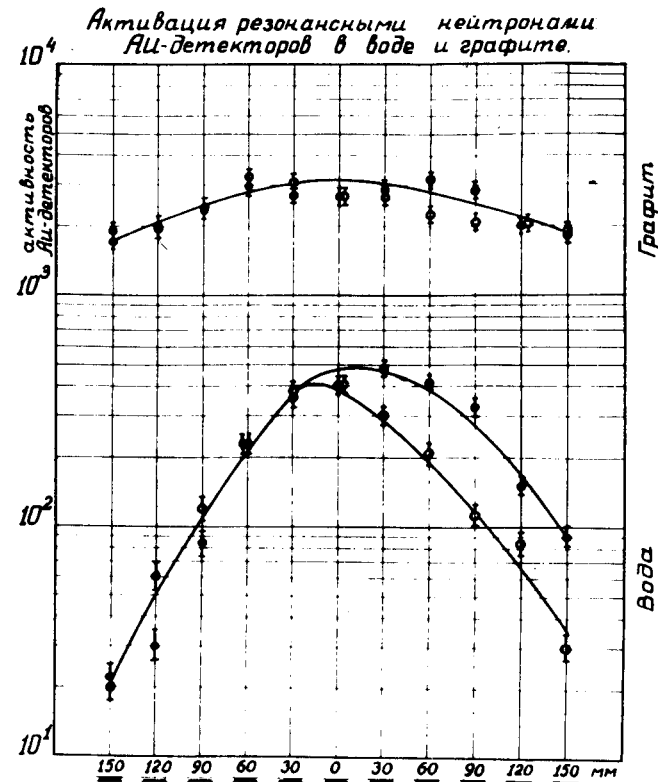


Рис. 6. Активация Au-детекторов резонансными нейтронами в зависимости от толщины замедлителей /графит и вода/.

○ - детекторы расположены под  $0^\circ - 180^\circ$  к оси пучка.  
● - детекторы расположены под  $90^\circ$  к оси пучка. Конвертор нейтронов - Be. Изотоп - Au-198 / $E_\gamma = 412$  кэВ/.  
Время облучения - 1 ч. Поток электронов - 1 мкА.  
Время измерения - 3 мин. Энергия  $E_e = 14-15$  МэВ.

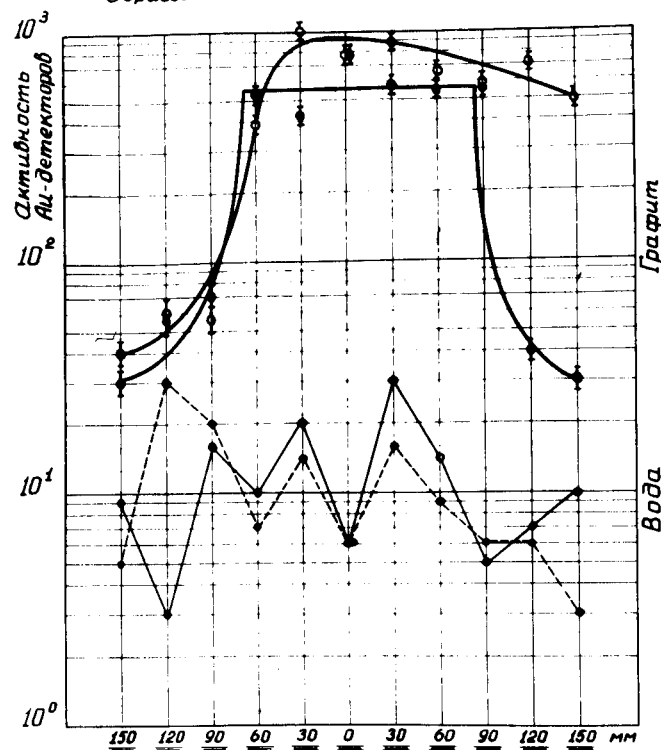


Рис. 7. Активация Au-детекторов быстрыми нейтронами в различных замедлителях /графит и вода/.

○- детекторы расположены под 0°- 180° к оси пучка.  
 ◐- детекторы расположены под 90° к оси пучка. Конвертор нейтронов Be. Изотоп Au-196 / E<sub>γ</sub> = 356 кэВ/.  
 Время облучения - 1 ч. Ток электронов - 1 мкА. Время измерения - 3 мин. Энергия E<sub>γ</sub> = 14-15 МэВ.

#### Обсуждение результатов

Из представленных в таблице результатов видно, что выход фотонейтронов из различных конверторов зависит от целого ряда параметров: энергии связи нейтрона, порядкового номера, плотности и размеров и т.д. Видно, что максимальный выход фотонейтронов, вероятно, с по-

бочными ядерными реакциями ( $\gamma, f$ ), ( $n, f$ ), ( $n, 2n$ ), будет иметь урановый конвертор сравнительно небольших размеров - порядка 10-15 мм толщиной.

Учитывая различие исследованных конверторов по вышеназванным параметрам, имеет смысл изучить оптимальную геометрию сложного конвертора, состоящего из свинца, бериллия и урана, в конкретной замедляющей среде с точки зрения получения максимального выхода фотонейтронов /влияние геометрии конвертора для свинца и урана экспериментально установлено в работе<sup>8/</sup>/.

Представленная на рис. 4 и 5 картина активации Au-детекторов в графитовом замедлителе показывает, что наибольшее количество резонансных нейтронов имеется в случае Pb-конвертора при фактически одинаковом выходе фотонейтронов для Be и Pb /см. таблицу/. Это объясняется более жестким спектром фотонейтронов в случае Be-конвертора. Во всех случаях - как под углами 0-180°, так и под углом 90° относительно оси конвертора - активность Au-детекторов меняется незначительно в зависимости от толщины графитового замедлителя /спад от центра на 25-30%/. Это позволяет выделить в графитовом замедлителе значительный объем для размещения большого количества активируемых образцов. Интересен характер активации Au-детекторов по изотопу <sup>196</sup>Au. Обращает на себя внимание аномальная активация в случае Be-конвертора, а также возрастание выхода <sup>196</sup>Au в зависимости от Z конвертора в области до 180°. Дополнительная активность по <sup>196</sup>Au в случае Be-конвертора объясняется его низкой энергией связи на нейтрон /1,67 МэВ/. При энергии падающих гамма-квантов порядка 14-15 МэВ в спектре фотонейтронов

бериллия будут иметь место нейтроны с энергией до 12 МэВ с незначительной /не более 0,5 МэВ/ анизотропией по угловому распределению. Эти высокоэнергетические нейтроны могут вызывать реакцию <sup>197</sup>Au(n, 2n) <sup>196</sup>Au, имеющую порог порядка 8 МэВ и максимальное сечение  $\sigma_{\max} \approx 2$  барн при E<sub>n</sub> = 11-12 МэВ. В случае же Zr-конвертора и Pb-конвертора, у которых энергия связи на нейтрон высока /~12 МэВ и ~7,3 МэВ соответственно/, спектр нейтронов более "мягкий" и



реакция  $(n, 2n)$  на золоте исключена. Образование изотопа  $^{196}\text{Au}$  в этом случае объясняется только  $(\gamma, n)$  реакцией: оно по всем направлениям для Pb- и Zr-конверторов идет фактически одинаково и лишь в направлении  $90^\circ - 180^\circ$  возрастает от Pb к Zr /и далее к Be / за счет уменьшения коэффициентов ослабления и массового поглощения фотонов и сильной анизотропии тормозного излучения по направлению пучка.

На рис. 6 представлена активация Au-детекторов в различных замедлителях - графите и воде - по изотопу  $^{198}\text{Au}$  от Be-конвертора. Видна существенная разница, связанная с различными замедляющими свойствами графита и воды: при максимальной толщине замедлителей /около 15 см/ активация в воде почти на два порядка хуже, чем в графите, а при минимальной /2,5 см/ - в 6-7 раз.

Несимметричная активация под углом  $90^\circ$  объясняется несовпадением оси пучка и оси конвертора.

На рис. 7 представлена активация Au-детекторов в замедлителях из графита и воды по изотопу  $^{196}\text{Au}$  от Be-конвертора. Образование  $^{196}\text{Au}$  в графите уже обсуждалось выше /рис. 4 и 5/. В воде образование  $^{196}\text{Au}$  по всем направлениям не обнаружено. Очевидно, что реакция  $(n, 2n)$  на золоте в водяном замедлителе совершенно незначительна из-за сильной замедляющей способности воды, а резкая анизотропия фотонов вдоль оси Be-конвертора в сочетании с различными свойствами рассеяния фотонов на графите и воде исключила возможность осуществления  $(\gamma, n)$  реакции.

На рис. 8 представлена картина активации Au-детекторов под углом  $90^\circ$  к оси пучка в графитовом замедлителе при расстоянии в 200 мм между Ta-мишенью и Be-конвертором. При этом активация проводилась одновременно как в Cd-экране, так и без него. За счет значительного расстояния между мишенью и конвертором расходимость тормозного излучения, вероятно, достигла значительных размеров. Поэтому "плато" при образовании  $^{196}\text{Au}$ , имеющее место на рис. 5, здесь отсутствует. Разница в образовании  $^{198}\text{Au}$  позволяет оценить кадмиевое отношение в графите для Be-конвертора: оно равно  $R_{\text{Cd}} = (A_{\text{th}} + A_{\text{epi}}) / A_{\text{epi}}$ , где  $A_{\text{th}}$  и  $A_{\text{epi}}$  - вели-

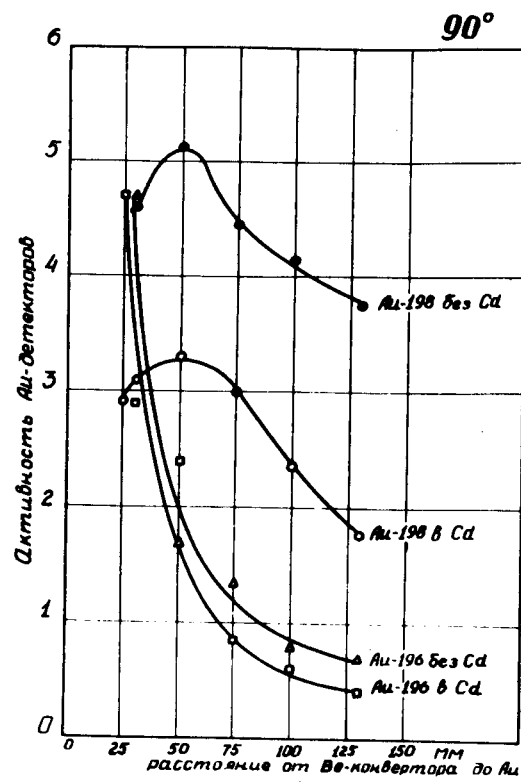


Рис. 8. Активация Au-детекторов в графитовом замедлителе при расстоянии 200 мм от Ta-мишени до Be-конвертора.

Условия облучения:  $E_{\bar{e}} = 14-15 \text{ МэВ}$ ,  $\tau_{\text{обл}} = 1 \text{ ч}$ ,  $i_{\bar{e}} = 1 \text{ мкА}$ ,  $\tau_{\text{изм}} = 3 \text{ мин}$ . Be-конвертор от Ta-мишени. Замедлитель - графит.

чина активности золотых фольг в потоке тепловых и эпитепловых нейтронов.

В нашем случае с Be-конвертором  $R_{\text{Cd}}$  составляет величину порядка 1,6-1,8, что свидетельствует о значительной доле надтепловых нейтронов /вычисленное по рис. 9  $R_{\text{Cd}}$  для Pb-конвертора равно 1,2-1,3/. Из полученного значения  $R_{\text{Cd}}$  можно оценить отношение потока тепловых и эпитепловых нейтронов. Для тонких золотых фольг применима формула /7/

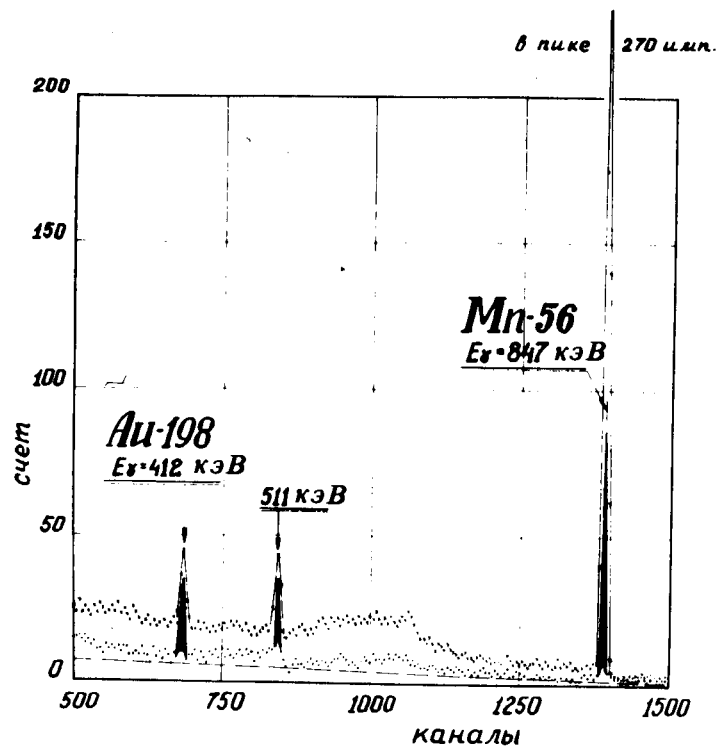


Рис. 9. Спектр реальной золотоносной породы. xxx - активация без Cd-экрана, ... - активация в Cd-экране, - - - - - аппаратный фон:

$$R_{Cd} = \Phi_{th} / \Phi_{epi} \times \frac{\sqrt{\pi}/2 \cdot a(T) \sigma_{act}}{J_{act}} + \epsilon_{Cd} + 1,$$

где  $\Phi_{th}$  - поток тепловых нейтронов;  $\Phi_{epi}$  - поток надтепловых нейтронов в единице летаргии;  $\sigma_{act}$  - сечение активации золота тепловыми нейтронами,  $\sigma_{act} = 98,5$  барн;  $J_{act}$  - резонансный интеграл активации золота,  $J_{act} = 2585$  барн;  $a(T)$  - некоторый температурный фактор, в данном эксперименте близок к единице;  $\epsilon_{Cd}$  - поправка, учитывающая толщину Cd-экрана, в нашем случае  $\epsilon_{Cd} = 0,07$ . Вычисленное значение  $\Phi_{th} / \Phi_{epi}$

составляет величину порядка  $32 \pm 2$ . Следовательно, в нашем случае доля надтепловых нейтронов составляет  $\sim 3\%$  в общем потоке нейтронов.

На рис. 9 представлены спектры реальной золотоносной породы с содержанием золота  $2,8 \cdot 10^{-5} \text{ г/г}$ , облученной фотонейтронами одновременно в кадмии и без кадмия при следующих условиях: время облучения - 1 ч; ток микрофона - 1 мкА; время охлаждения - 10 мин; время измерения - 10 мин; вес образца - 7,8 г; конвертор нейтронов - свинец  $\phi 50$ ,  $l = 50$ ; замедлитель - графит толщиной 7,5 см. При этих условиях интенсивность линии  $E_{\gamma} = 412$  кэВ составила 15 имп/мин в Cd-экране и 18 имп/мин без Cd-экрана. Интенсивность линии  $^{56}\text{Mn}$   $E_{\gamma} = 847$  кэВ снизилась за счет Cd-экрана с 250 имп/мин до 50 имп/мин, и отношение пик/фон в области  $E_{\gamma} = 412$  кэВ возросло с 1:1 до 5:1 /за вычетом случайного аппаратного фона/. Из приведенных данных видно, что если обеспечить облучение образцов при токе на микрофоне порядка 20-30 мкА в течение 10 ч, то возможно обеспечить чувствительность по золоту порядка  $0,1 - 0,15 \cdot 10^{-6} \text{ г/г}$  при прочих условиях, принятых в данной работе. Сравнение ядерно-физических данных золота с данными других элементов, имеющих значительные резонансные интегралы захвата надкадмиевых нейтронов /индий, серебро, уран, торий, тантал, целый ряд редких земель и т.д./, позволяет сделать вывод, что чувствительность их определения при изложенных в работе условиях можно ожидать порядка  $10^{-7} - 10^{-6} \text{ г/г}$ .

Автор глубоко признателен Г.Н.Флерову за постановку задачи и руководство исследованием, Ч.Шимане, Е.Д.Воробьеву, В.Н.Самосюку за обсуждение результатов эксперимента, А.Г.Белову за техническое обеспечение эксперимента, Л.П.Кулькиной и К.Андриесеку за помощь в проведении экспериментов.

#### Литература

1. Г.Н.Флеров, В.Я.Выропаев. Препринт ОИЯИ, 13-8849, Дубна, 1975.
2. С.П.Капица, В.М.Мелехин. Микрофрон, М., Наука, 1969.

3. В.К.Бровцын, В.Н.Самосюк, Ю.М.Ципенюк. АЭ, т. 32, вып. 5, 1972, стр. 383.
4. Н.А.Власов. Нейтроны, М., Наука, 1971, стр. 395.
5. Физика быстрых нейтронов. Под редакцией Дж. Мариона, Дж. Фаулера, т. 2, М., Атомиздат, 1966.
6. Л.М.Беляева, И.Ланг, Ю.Намсарай, О.К.Нефедьев. Сообщение ОИЯИ, 10-7837, Дубна, 1974.
7. К.Бекурц, К.Виртц. Нейтронная физика. Атомиздат, М., 1968.
8. D.V.Gayther and P.D.Goode. *Journal of Nuclear Energy*, vol. 21, 1967, p. 733. Printer in Northern Ireland.

Рукопись поступила в издательский отдел  
8 января 1976 года.