

ОБЪЕДИНЕННЫЙ ИНСТИТУТ ЯДЕРНЫХ ИССЛЕДОВАНИЙ

15-96-125

Э-95

На правах рукописи
УДК 539.1.05

ЭНХЖИН
Лувсанцэрэнгийн

**МЕТОД ЯДЕРНОЙ ТРЕКОВОЙ РАДИОГРАФИИ
И ЕГО НЕКОТОРЫЕ ПРИМЕНЕНИЯ
В НАУЧНЫХ И ПРИКЛАДНЫХ ИССЛЕДОВАНИЯХ**

Специальность: 01.04.16 — физика ядра
и элементарных частиц

Автореферат диссертации на соискание ученой степени
кандидата физико-математических наук

Дубна 1996

Работа выполнена в Лаборатории ядерных реакций им. Г.Н.Флерова
Объединенного института ядерных исследований.

Научный руководитель:

доктор физико-математических наук,
ведущий научный сотрудник

Перельгин Владимир Павлович

Официальные оппоненты:

доктор физико-математических наук,
профессор

Замятин Юрий Сергеевич

доктор физико-математических наук,
старший научный сотрудник

Николаев Вадим Аркадьевич

Ведущая организация:

Московский инженерно-физический институт

Защита диссертации состоится " " 1996 года на заседании
Специализированного совета Д 047.01.05 при Лаборатории нейтронной физики
им. И.М.Франка и Лаборатории ядерных реакций им. Г.Н.Флерова
Объединенного института ядерных исследований, г. Дубна, Московская область.

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке ОИЯИ.

Автореферат разослан " " 1996 года.

Ученый секретарь Специализированного совета,
кандидат физико-математических наук

Понско А.Г.

Общая характеристика работы

Актуальность проблемы

В настоящее время метод твердотельных трековых детекторов ядер (ТТДЯ) находит применение в самых различных областях науки и техники. Одним из областей использования ТТДЯ является радиография делящихся элементов и α -излучателей. В большинстве случаев для радиографии элементов данным методом используются радиоактивные излучения - тепловые и резонансные нейтроны, γ -кванты, ускоренные частицы, такие как протоны, дейтроны, α -частицы, тяжелые ионы. Одним из источников таких излучений является микроотрон - ускоритель электронов, генерирующий тормозное излучение, а также поток тепловых и резонансных нейтронов. Для эффективного использования микроотрона необходимо было расширить круг прикладных исследований, проводимых на его пучках, разработать методы решения поставленных задач. В свете применения метода ТТДЯ наряду с радиографией элементов поле тепловых нейтронов, получаемое на микроотроне, может быть использовано также при определении трекового возраста геологических образцов. С другой стороны, имеются другие разнообразные области применения ТТДЯ на пучках различных источников частиц, в частности, ускорителей тяжелых ионов средних и высоких энергий.

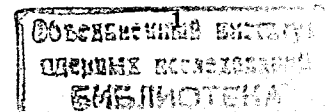
Цель работы:

Разработка методик определения содержания и пространственного распределения делящихся элементов, таких как Th, U, элементов групп Bi-Pb, Au-Pt, а также элемента Be в образцах с помощью ТТДЯ методом радиографии с использованием тормозного излучения, получаемого на микроотроне, и других частиц, применение ТТДЯ в датировании и выявлении термической истории образцов, в исследованиях электроядерного способа получения энергии.

Научная новизна работы

1. Разработан метод определения содержания Th в образцах с помощью тепловых нейтронов и γ -квантов. Новизной методики является то, что вместо отношения полных сечений деления ядер U и Th γ -квантами экспериментально определялось отношение выходов реакций их деления для "бесконечно толстых" источников осколков деления - металлических пластинок U и Th. Чувствительность метода составляет 10^{-8} г/г.

2. Исследовано поведение отношения выходов реакций деления ядер U и Th в зависимости от максимальной энергии тормозного излучения в интервале от 7 МэВ до 23.5 МэВ. На этой основе впервые предложена методика определения содержания U и Th в образцах путем двойного γ -облучения различных энергий.



3. Разработана методика определения пространственного распределения элементов групп Bi-Pb и Au-Pt путем облучения ускоренными ионами ^{12}C . Экспериментально выбраны оптимальные условия отжига треков осколков деления во фторфлогопите с целью повышения чувствительности метода - устранения фона от составных ядер и ядер отдачи. Пространственное разрешение - ± 10 мкм.

4. Разработан метод определения содержания Be в образцах с помощью γ -квантов с энергией $4.6 \text{ МэВ} \leq E_\gamma \leq 9 \text{ МэВ}$. Выведена полуэмпирическая формула для эффективного рабочего слоя вещества для α -частиц с энергией 1.498 МэВ, испускающихся в результате распада ядра ^8Be первого возбужденного уровня, которое образуется при реакции $^9\text{Be}(\gamma, n)^8\text{Be}^*$. Чувствительность метода - 10^{-6} г/г.

5. При определении трекового возраста образцов из Баян-Нуур, Монголия, дана приблизительная оценка термической истории пород на основе разницы температур сохранения треков в гранате и мусковите.

6. ТТДЯ успешно использованы в исследованиях по электроядерному способу получения энергии, проводимых по проекту "Энергия" на установке "Свинцовый блок".

Практическая ценность работы

Разработанные методики определения содержания Th и U использовались для анализа многочисленных образцов почв, угля, золы угля, строительных материалов, волос человека, пепла сигарет. Метод определения содержания Th путем двойного γ -облучения нашел практическое применение для контроля степени химической очистки препаратов техногенного плутония от этих элементов. Селективный анализ элементов групп Bi-Pb, Au-Pt в минералах может быть применен при поисках новых месторождений. Простой и дешевый метод определения содержания Be используется для контроля опасного уровня загрязнения окружающей среды бериллием. В работе показана возможность определения трекового возраста минералов с содержанием урана $C_U \geq 10^{-6}$ г/г с использованием микротрона.

Автор выносит на защиту:

1. Метод определения содержания тория в образцах с помощью тепловых нейтронов и γ -квантов.
2. Метод определения содержания тория и урана в образцах путем двойного облучения образцов γ -квантами при двух различных энергиях.
3. Применение вышеуказанного метода при анализе техногенного плутония.
4. Метод селективного анализа элементов групп Bi-Pb и Au-Pt с помощью ускоренных ионов ^{12}C .

5. Новый способ определения содержания и пространственного распределения бериллия в образцах путем облучения γ -квантами с энергией $4.6 \leq E_\gamma \leq 9 \text{ МэВ}$.

6. Результаты измерений трекового возраста образцов слюд мусковита, биотита и флогопита, кристаллов апатита, граната, циркона и сфена.

7. Результаты экспериментов по использованию ТТДЯ в исследованиях по электроядерному способу получения энергии.

Апробация работы

Основные результаты и отдельные положения работы докладывались на рабочем совещании "ТТДЯ и их применение" (Дубна, 1990), на рабочем совещании "Radon Monitoring in Radioprotection, Environmental and/or Earth Sciences" (Триест, 1991), на 16-ой Международной конференции по Трекам ядер в твердых телах (Пекин, 1992), на II рабочем совещании "ТТДЯ и их применение" (Дубна, 1993), на Школе-семинаре по физике тяжелых ионов (Дубна, 1993), на 17-ой Международной конференции по трекам ядер в твердых телах (Дубна, 1994), на 3-м международном совещании "Ядерная физика для охраны окружающей среды" (Дубна, 1995).

Публикации

Материал диссертации изложен в 7 докладах, опубликованных в сборниках материалов совещаний и конференций, в 3-х препринтах и 1-м сообщении ОИЯИ, в 1-й публикации в сборнике трудов ЛЯР ОИЯИ, в 1-м изобретении и в 2-х статьях в научных журналах.

Структура и объем работы

Диссертация состоит из введения, четырех глав, заключения и списка литературы. Работа изложена на 104 страницах машинописного текста, включая 26 рисунков, 14 таблиц и список литературы из 158 наименований.

Содержание работы

ПЕРВАЯ глава диссертации посвящена обзору литературы по применению твердотельных трековых детекторов для определения содержания делящихся элементов и α -излучателей методом радиографии.

ВТОРАЯ глава посвящена методам определения содержания в образцах таких делящихся элементов, как Th, U, Bi-Pb, Au-Pt.

а. ОПРЕДЕЛЕНИЕ СОДЕРЖАНИЯ Th В ОБРАЗЦАХ С ПОМОЩЬЮ ТЕПЛОВЫХ НЕЙТРОНОВ И γ -КВАНТОВ

Определение содержания Th в образцах методом ТТДЯ проводится обычно с помощью облучения исследуемых и эталонных образцов такими быстрыми частицами, как α -частицы, дейтроны, протоны и др. В предложенном нами методе используются γ -кванты.

Эксперименты проводились на микротроне МТ-25 ЛЯР, детектором осколков деления служил полиэтилентерефталат (лавсан).

При облучении γ -квантами эталонного образца урана и исследуемого образца плотности треков осколков деления ядер ^{238}U и ^{232}Th на детекторах соответственно равны:

$$N_{\text{эт}}^{\gamma} = \phi^{\gamma} \sigma^{\gamma}_{\text{U}} C_{\text{эт}} \varepsilon A/238 \quad (1)$$

$$N_{\text{обр}}^{\gamma} = \phi^{\gamma} \sigma^{\gamma}_{\text{U}} \varepsilon C_{\text{U}} R_{\text{эфф U}} A/238 + \phi^{\gamma} \sigma^{\gamma}_{\text{Th}} \varepsilon C_{\text{Th}} R_{\text{эфф Th}} A/232$$

где ϕ^{γ} - флюэнс γ -квантов, $\sigma^{\gamma}_{\text{U}}$ и $\sigma^{\gamma}_{\text{Th}}$ - сечения деления соответственно ядер ^{238}U и ^{232}Th γ -квантами, $R_{\text{эфф U}}$ и $R_{\text{эфф Th}}$ - эффективный рабочий слой образца для осколков деления соответственно ядер ^{238}U и ^{232}Th , $C_{\text{эт}}$ - концентрация урана в эталоне в $\text{мг}/\text{см}^2$, A - число Авогадро, ε - эффективность регистрации детектора, C_{U} и C_{Th} - содержание урана и тория в образце.

Здесь содержание урана C_{U} определяется при помощи облучения образца и эталона тепловыми нейтронами:

$$C_{\text{U}} = \frac{C_{\text{эт}} N_{\text{обр}}^{\text{n}}}{N_{\text{эт}}^{\text{n}} R_{\text{эфф}}} \quad (2)$$

где $N_{\text{обр}}^{\text{n}}$ и $N_{\text{эт}}^{\text{n}}$ - плотности треков осколков деления соответственно от образца и эталона.

Наиболее трудноопределяемыми величинами в выражениях (1) являются $\sigma^{\gamma}_{\text{U}}$ и $\sigma^{\gamma}_{\text{Th}}$. В предложенном методе вместо отношения сечений деления ядер U и Th γ -квантами экспериментально определялось отношение выходов реакций их деления $N_{\text{U}}/N_{\text{Th}}$ для "бесконечно толстых" источников осколков - металлические пластинки U и Th в контакте с лавсановыми детекторами облучались γ -квантами в интервале энергии от 7 МэВ до 23.5 МэВ (рис. 1). Таким образом, с учетом того, что $R_{\text{эфф U}} \approx R_{\text{эфф Th}}$, содержание Th в образце вычисляется из следующего простого выражения:

$$C_{\text{Th}} = \left\{ \frac{N_{\text{обр}}^{\gamma} N_{\text{эт}}^{\text{n}} N_{\text{U}}}{N_{\text{обр}}^{\text{n}} N_{\text{эт}}^{\gamma} N_{\text{Th}}} - \frac{N_{\text{U}}}{N_{\text{Th}}} \right\} C_{\text{U}} \quad (3)$$

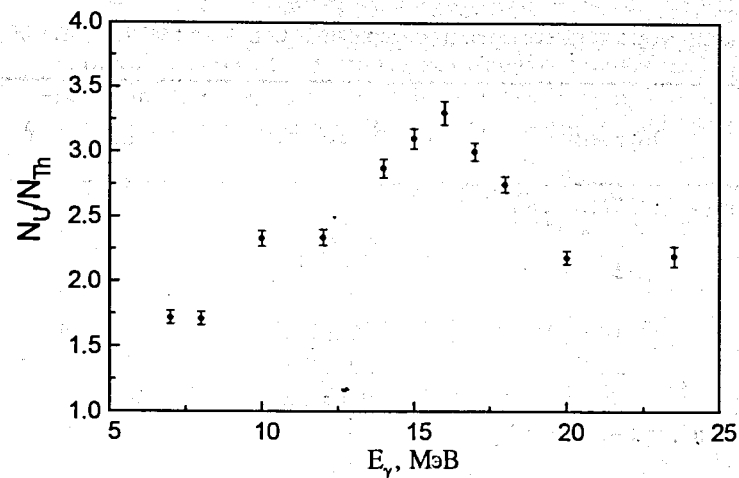


Рис. 1. Отношение выходов осколков деления от "бесконечно толстых" слоев металлических урана и тория в зависимости от энергии γ -квантов

Метод опробован с помощью стандартных почвенных образцов и железомарганцевых конкреций из Тихого океана. Как видно из таблицы 1, результаты измерений хорошо согласуются с известными данными.

Чувствительность метода достигает 10^{-8} г/г.

В таблице 2 представлены результаты измерений C_{U} и C_{Th} в различных образцах.

Таблица 1. Результаты измерений содержания U и Th в стандартных почвенных образцах и образцах конкреций

Образец	$C_{\text{U}}, 10^{-6} \text{ г/г}$		$C_{\text{Th}}, 10^{-6} \text{ г/г}$	
	известные данные	опыт с нейтронами	известные данные	опыт с γ -квантами
СГД-1А	2.0	2.0 ± 0.3	9.0	7.9 ± 1.0
СТ-1А	0.8	1.2 ± 0.2	2.6	2.9 ± 0.5
СП-2	5.0	5.2 ± 0.8	6.0	6.5 ± 1.1
Конкреция-1	4.0-6.0	5.0 ± 0.8	10-150	33.0 ± 5.6
Конкреция-2	- " -	5.0 ± 0.8	- " -	115.0 ± 19.5

Таблица 2. Результаты измерений содержания U и Th в исследуемых образцах

Образец	C _U , 10 ⁻⁶ г/г	C _{Th} , 10 ⁻⁶ г/г
Уголь ТЭЦ (Монголия)		
1	3.8 ± 0.6	
2	65.5 ± 7.9	
3	17.5 ± 2.1	11.9 ± 1.4
4	1.2 ± 0.2	1.0 ± 0.1
5	3.2 ± 0.5	2.0 ± 0.3
6	42.3 ± 5.0	23.7 ± 2.5
Волосы человека		
1	1.3 ± 0.2	
2	1.2 ± 0.2	
3	0.6 ± 0.1	
4	0.4 ± 0.07	
5	0.2 ± 0.03	
Пепел сигарет		
Monte Carlo	0.3 ± 0.05	< 0.1
Nazionale	0.3 ± 0.05	0.1 ± 0.02
More	0.2 ± 0.03	0.4 ± 0.07
Salem	0.3 ± 0.05	0.4 ± 0.07
NB	0.2 ± 0.03	0.1 ± 0.02
Дукат Москва	0.8 ± 0.10	< 0.3
Ява	0.5 ± 0.08	< 0.2
Строительные материалы		
1	0.2 ± 0.05	3.0 ± 0.5
2	0.9 ± 0.15	0.7 ± 0.1
3	0.3 ± 0.05	2.7 ± 0.4
4	2.0 ± 0.30	0.1 ± 0.02
5	0.5 ± 0.08	4.8 ± 0.7
6	1.4 ± 0.20	2.3 ± 0.3

6. ОПРЕДЕЛЕНИЕ СОДЕРЖАНИЯ U и Th В ОБРАЗЦАХ ПУТЕМ ДВОЙНОГО ГАММА-ОБЛУЧЕНИЯ

На основании того, что отношение выходов реакций деления ядер урана и тория N_U/N_{Th} в интервале энергии от 7 МэВ до 23.5 МэВ различается весьма существенно - от 1.7 до 3.2 (рис. 1), был предложен метод определения

содержания как урана, так и тория путем двойного облучения γ -квантами различных энергий. Вследствие того, что выход осколков деления на 1 мкА·ч при энергии (7 - 8) МэВ примерно на два порядка ниже, чем при более высоких энергиях, в экспериментах были выбраны области энергий (15-17) МэВ и (20 - 23) МэВ.

Плотности треков на детекторах, облученных в контакте с урановым эталоном и образцом, будут соответственно равны (индексы ¹ и ² соответствуют областям энергий (20 - 23) МэВ и (15 - 17) МэВ):

$$N^1_{обр} = \phi^1 \sigma^1_U \epsilon C_U R_{эфф} A/238 + \phi^1 \sigma^1_{Th} \epsilon C_{Th} R_{эфф} A/232 \quad (4)$$

$$N^2_{обр} = \phi^2 \sigma^2_U \epsilon C_U R_{эфф} A/238 + \phi^2 \sigma^2_{Th} \epsilon C_{Th} R_{эфф} A/232$$

$$N^1_{эт} = \phi^1 \sigma^1_U \epsilon C_{U_{эт}} A/238 \quad (5)$$

$$N^2_{эт} = \phi^2 \sigma^2_U \epsilon C_{U_{эт}} A/238$$

где $\phi^{1,2}$ - поток γ -квантов, $\sigma^{1,2}_U$ и $\sigma^{1,2}_{Th}$ - сечения деления ядер урана и тория γ -квантами соответствующих энергий, ϵ - эффективность регистрации детектора, $R_{эфф}$ - эффективный рабочий слой вещества в мг/см², A - число Авогадро, C_U и C_{Th} - концентрации урана и тория в образце, $C_{эт}$ - концентрация урана в эталоне в мг/см².

Заменив отношения сечений деления ядер урана и тория σ^1_U/σ^1_{Th} и σ^2_U/σ^2_{Th} на отношения выходов реакций $U(\gamma, f)$ и $Th(\gamma, f)$ - плотностей треков от "бесконечно толстых" слоев урана и тория, из двух систем выражений (4) и (5) можно вывести формулы для содержания урана и тория в образцах C_{Th} и C_U :

$$C_{Th} = \frac{C_{U_{эт}}}{R_{эфф}} \cdot \frac{N^1_{обр}/N^1_{эт} - N^2_{обр}/N^2_{эт}}{N^1_{Th}/N^1_U - N^2_{Th}/N^2_U} \quad (6)$$

$$C_U = \frac{C_{U_{эт}}}{R_{эфф}} \cdot \frac{N^2_{обр} \left\{ 1 - \frac{N^1_{обр}/N^1_{эт} \times N^2_{эт}/N^2_{обр} - 1}{N^1_{Th}/N^1_U \times N^2_{Th}/N^2_U - 1} \right\}}{N^2_{эт} \left\{ 1 - \frac{N^1_{обр}/N^1_{эт} \times N^2_{эт}/N^2_{обр} - 1}{N^1_{Th}/N^1_U \times N^2_{Th}/N^2_U - 1} \right\}} \quad (7)$$

В таблице 3 дано сравнение результатов измерений, полученных данным методом и методом, описанным в пункте (а); прослеживается согласие результатов в пределах ошибок измерений.

Таблица 3. Сравнение результатов измерений, полученных различными методами

Образец	$C_U, \times 10^{-6} \text{ г/г}$		$C_{Th}, \times 10^{-6} \text{ г/г}$		
	n-метод метод	γ_{20}/γ_{16}	n/ γ_{20} -метод	γ_{20}/γ_{16} -метод	
Зола угля	1	115.1±13.8	117.8±14.1	64.4±7.7	73.3±8.8
	2	114.5±13.7	117.8±14.1	78.9±9.4	86.8±10.4
	3	71.1±8.5	65.5±7.9	18.3±2.2	18.4±2.2
Пепел сигарет	1	0.32±0.05	0.39±0.06	0.15±0.02	0.17±0.03
	2	0.20±0.03	0.24±0.04	0.42±0.06	0.39±0.06
	3	0.11±0.01	0.15±0.02	0.24±0.04	0.24±0.04
Почвенные образцы	1	2.4±0.4	2.1±0.3	2.4±0.4	2.8±0.5
	2	1.6±0.2	1.8±0.3	3.9±0.6	4.4±0.6
	3	2.2±0.3	2.0±0.3	6.6±1.0	7.2±1.1

Преимуществом этого метода по сравнению с предыдущим состоит в том, что при облучении образцов γ -квантами на микротроне при интенсивности пучка электронов ~ 10 мкА требуется всего 1 ч экспозиции (при $C_U, C_{Th} \sim 10^{-6} - 10^{-8} \text{ г/г}$) при каждой энергии, тогда как облучение тепловыми нейтронами в графитовом кубе микротрона требует примерно 10-12 ч вследствие малого потока нейтронов.

Исследования по определению содержания Th и U нашли применение для анализа образцов (почв, живых организмов, растений и т.д.), сильно загрязненных техногенным плутонием, а именно, для контроля степени химической очистки препаратов от этих элементов.

в. СЕЛЕКТИВНЫЙ АНАЛИЗ ЭЛЕМЕНТОВ ГРУПП Bi-Pb И Au-Pt

Проблема селективного измерения низких концентраций Bi, Pb и Au, Pt, Ir, Os в минералах связана с поисками новых месторождений. Часто возникает необходимость определения не только измерения их среднего содержания, но и определения их распределения в минералах с пространственным разрешением 10 - 20 мкм, что и достигается при помощи метода ТТДЯ.

Эксперименты проводились на циклотронах У-200 и У-400. Образцы горных пород вместе с металлическими фольгами Pb, Bi, Au, Pt и Os облучались ионами ^{12}C с энергией 9.1 и 13.2 МэВ/нукл. Детектором осколков деления служила синтетическая слюда фторфлогопит.

Выбраны оптимальные условия отжига треков осколков деления во фторфлогопите - 480°C в течение 6 ч, при которых полностью устраняются

фоновые треки ядер отдачи и компаунд-ядер, которые образуются при взаимодействии ионов ^{12}C с ядрами элементов, составляющих детектор.

После облучения слюды фторфлогопит были заменены α -чувствительными детекторами CR-39 (полиаллилдигликолькарбонат) для регистрации индуцированной α -активности нуклидов, образованных в мишенях.

Из рис. 2 видно, что относительные выходы осколков деления ядер Pt, Au, Pb и Bi приблизительно одинаковы. Однако, в детекторах CR-39, находившихся в контакте с металлическими фольгами Pt и Au после облучения, не обнаружено плотности треков α -частиц, превышающей обычный фон - $\leq 10^{-2} \text{ тр.см}^{-2}$. Соответствующая плотность треков α -частиц для фольг Pb и Bi была на уровне 10^6 тр.см^{-2} . Таким образом, путем сравнения радиограмм осколков деления и α -частиц для одного и того же образца различали локализации, содержащие ядра Bi-Pb и ядра Au-Pt, по наличию или отсутствию треков α -частиц в зонах расположения треков осколков деления.

Пространственное распределение метода для осколков деления составляет ± 10 мкм, что определяется средним пробегом осколков деления в мишени и в детекторе.

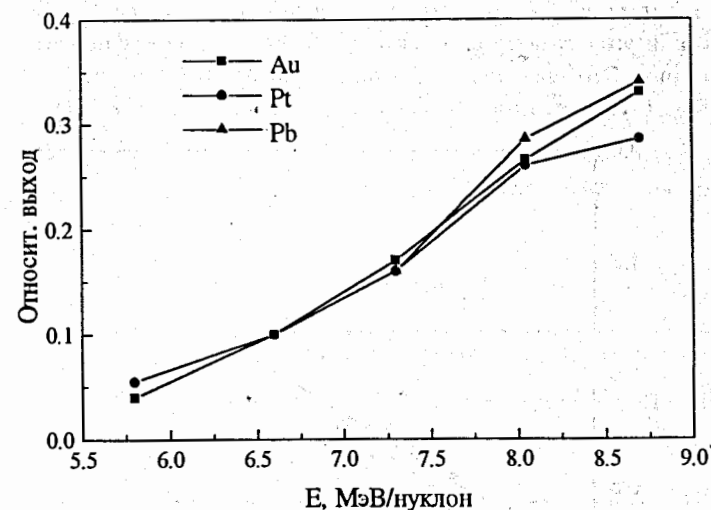


Рис. 2. Относительный выход осколков деления Au, Pt, Pb в зависимости от энергии ускоренных ионов ^{12}C

В ТРЕТЬЕЙ главе описан новый метод определения содержания бериллия в образцах с помощью γ -квантов. При взаимодействии γ -квантов с энергией $4 \text{ МэВ} \leq E_\gamma \leq 9 \text{ МэВ}$ с ядром ^9Be протекает реакция $^9\text{Be}(\gamma, n)^8\text{Be}^*$ в основном с образованием ядра ^8Be на первом возбужденном уровне - 2.9 МэВ (энергия связи

нейтрона равна 1.7 МэВ). Это ядро распадается на две α -частицы с энергией $E_\alpha = (2.9 \text{ МэВ} + 0.096 \text{ МэВ})/2 = 1.498 \text{ МэВ}$, которые эффективно регистрируются α -чувствительными детекторами. Сечение данной реакции имеет максимум при энергии γ -квантов $E_\gamma = 6 \text{ МэВ}$ и приблизительно равно 1.2 мб, соответственно в предложенном методе используются γ -кванты этой энергии.

Эксперименты проводились на микротроне МТ-25, детектором α -частиц служил пластик CR-39, а в качестве эталона использовалась металлическая фольга бериллия с толщиной 7 мкм.

Поскольку и эталон, и образец являются "бесконечно толстыми" по отношению к пробегу α -частиц с энергией 1.498 МэВ, необходимо знать эффективный рабочий слой бериллия и любого вещества со сложным химическим составом $R_{эфф}$, для которого в данном детекторе регистрируются все α -частицы с данной энергией. Для бериллия $R_{эфф}$ рассчитано по следующей формуле:

$$R_{эфф \text{ Be}} = 1/2 (R - r \rho_d) \cos \theta_k \quad (8)$$

где R - пробег α -частиц ($E_\alpha = 1.498 \text{ МэВ}$) в бериллии в $\text{мг}/\text{см}^2$, r - пробег α -частиц в детекторе CR-39 в см, ρ_d - плотность детектора CR-39 в $\text{мг}/\text{см}^3$, θ_k - критический угол травления детектора CR-39, $1/2$ - коэффициент, учитывающий 2π -геометрию. Это значение было найдено равным $0.246 \text{ мг}/\text{см}^2$.

$R_{эфф}$ было рассчитано также для других 11 элементов (рис. 3).

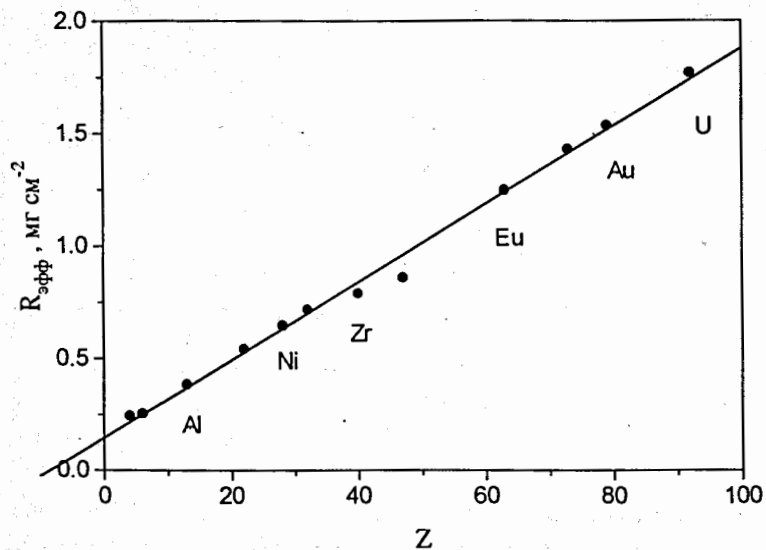


Рис. 3. Зависимость эффективного рабочего слоя $R_{эфф}$ от атомного номера элемента Z

Из этой линейной зависимости выведена полуэмпирическая формула для эффективного рабочего слоя $R_{эфф}$ вещества сложного химического состава для α -частиц с энергией 1.498 МэВ, регистрирующихся в детекторе CR-39:

$$R_{эфф} = (0.017 \sum_{i=1}^n \alpha_i Z_i + 0.146) \text{ мг}/\text{см}^2 \quad (9)$$

где Z_i - атомный номер i -ой компоненты вещества, α_i - ее процентное содержание.

Таким образом, содержание бериллия в образцах можно рассчитать из следующей формулы:

$$C_{обр} = \frac{R_{эфф \text{ Be}} N_{обр}}{N_{эт} R_{эфф \text{ обр}}} \quad (10)$$

С целью проверки формулы (9), а значит и формулы (10), два различных кристалла берилла, а также бериллиевый эталон в контакте с детектором CR-39 были облучены на микротроне γ -квантами с энергией 6 МэВ в течение 30 мин при токе электронов 7 мкА. После облучения детекторы протравливались в 6N NaOH при температуре 70°C в течение 1.5 - 2.5 ч. Химическая формула кристалла берилла - $\text{Be}_3\text{Al}_2\text{Si}_6\text{O}_{13}$, т.е. $C_{\text{Be}} = 0.045 \text{ г}/\text{г}$. Результаты измерений представлены в таблице 4.

Таблица 4. Результаты измерения содержания Be в кристаллах берилла

Образец	$R_{эфф}$, $\text{мг}/\text{см}^2$	Плотность треков, $\text{тр}/\text{см}^2$	Концентрация бериллия, г/г
Эталон	0.246	1.71×10^6	
Берилл-1	0.426	1.24×10^5	0.042 ± 0.002
Берилл-2	0.426	1.35×10^5	0.046 ± 0.002

Из таблицы видно, что результаты измерений хорошо согласуются в пределах ошибок измерений с известной концентрацией Be в кристаллической матрице берилла, что и доказывает справедливость формул (9) и (10).

При определении содержания бериллия в образцах с помощью γ -квантов мешающими элементами могут служить бор и литий, которые могут входить в состав исследуемых образцов. С целью выявления соотношения выходов реакций фоторасщепления ядра ^9Be и изотопов ядер Li и B препараты этих элементов в

контакте с детекторами CR-39 были облучены γ -квантами в интервале энергии от 6 МэВ до 14 МэВ. Результаты экспериментов показаны на рис. 4. Как видно из рисунка, при энергии γ -квантов до 10 МэВ основным элементом является только литий. Вклад в образование α -частиц (а также ${}^3\text{H}$) с энергией, близкой к 1.5 МэВ, вносят реакции: ${}^6\text{Li}(\gamma, np){}^4\text{He}$; ${}^7\text{Li}(\gamma, t){}^4\text{He}$. Для устранения фона от Li образцы нагреваются до нескольких сотен градусов Цельсия, в результате чего улетучиваются молекулы лития. Или же уровень примеси Li в образцах можно учитывать в независимом эксперименте по облучению исследуемых образцов тепловыми нейтронами, поскольку изотоп ${}^6\text{Li}$ имеет высокое сечение реакции (n, α) - 945 б.

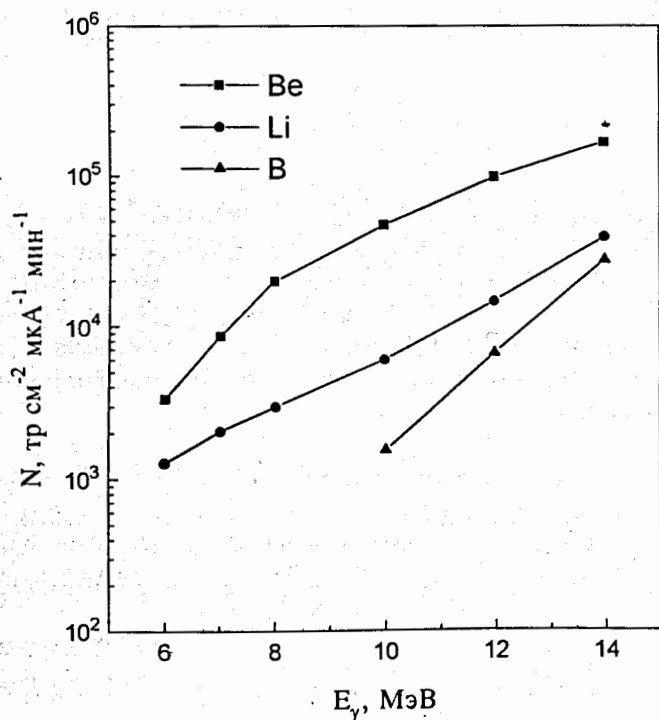


Рис. 4. Зависимость плотности треков α -частиц, приведенной к интенсивности электронов в мкА и ко времени облучения в мин., от максимальной энергии γ -квантов

Для учета собственного фона детекторов в каждом эксперименте облучался детектор CR-39 без контакта с каким-либо препаратом.

Чувствительность метода достигает 10^{-6} г/г, что охватывает практически весь диапазон опасного уровня загрязнения окружающей среды бериллием.

Почвенные образцы из города Усть-Каменогорск, где работает полиметаллический завод, были исследованы на содержание в них элемента Be. Были обнаружены вкрапления размером 0.1 - 0.2 мм², содержащие $(3+8) \times 10^{-3}$ г/г бериллия.

ЧЕТВЕРТАЯ глава посвящена применению ТТДЯ в датировании геологических образцов, а также в экспериментах по электроядерному способу получения энергии.

а. ОПРЕДЕЛЕНИЕ ТРЕКОВОГО ВОЗРАСТА МИНЕРАЛОВ

Способность большинства природных кристаллов регистрировать и сохранять треки осколков спонтанного деления ${}^{238}\text{U}$, а также тот факт, что уран является весьма распространенным в природе элементом, открывает возможность определения трекового возраста минералов.

Формула для определения трекового возраста минерала вытекает из закона радиоактивного распада:

$$A = 1/\lambda_D \cdot \ln(\lambda_D/\lambda_f \cdot \rho_s/\rho_i \cdot I \cdot \sigma \cdot F + 1) \quad (11)$$

где λ_D - суммарная постоянная распада ${}^{238}\text{U}$, λ_f - постоянная спонтанного деления ${}^{238}\text{U}$, ρ_s - плотность треков спонтанного деления ${}^{238}\text{U}$, ρ_i - плотность треков индуцированного деления ${}^{235}\text{U}$ тепловыми нейтронами, I - отношение содержания изотопов урана ${}^{235}\text{U}$ и ${}^{238}\text{U}$, σ - сечение деления ${}^{235}\text{U}$ тепловыми нейтронами, F - флюенс тепловых нейтронов.

Нами были измерены трековые возрасты образцов слюд мусковита, флогопита, биотита, кристаллов апатита, граната, циркона и сфена. Облучение производилось в основном на реакторе ИБР-2. В случае тех образцов, содержание урана в которых $C_U \geq 10^{-6}$ г/г, использовался поток нейтронов, получаемый в графитовом кубе микротрона МТ-25; для увеличения кадмиевого отношения нейтронного поля образцы помещались в парафиновый контейнер с толщиной стенки 3 см.

Флюенс нейтронов в нашей группе измеряется при помощи равномерного "тонкого" калиброванного слоя естественного урана 0.13 мкг/см² или 12.5 мкг/см².

Измерение трекового возраста минералов производилось в основном методом "внешнего детектора", т.е. плотность треков осколков индуцированного деления определялась не в самом кристалле, а в детекторе в контакте с которым облучался образец. В этом случае в формуле для определения трекового возраста

(11) добавляется перед отношением ρ_s/ρ_i множитель "1/2", учитывающий тот факт, что ρ_i есть плотность треков осколков индуцированного деления, образованных в 2л-пространстве, тогда как при определении плотности треков осколков спонтанного деления ρ_s подсчитываются треки, образованные в 4л-пространстве.

В таблице 5 представлены условия травления кристаллов, применявшиеся в наших экспериментах. Измеренные значения трекового возраста исследованных минералов представлены в таблице 6.

Группа образцов мусковита, биотита и граната (последние 4 образца в таблице 6) были отобраны из одной и той же местности - Баян Нуур, Архангай аймаг, Монголия. Из космических снимков видно, что в этой местности образована кратерообразная структура с диаметром 5 км. Геологические измерения показали, что разница высот уровня на окраине и в центре этого углубления составляет ~1 км. Образцы были отобраны в 2 км от центра кратера.

Трековый возраст, определенный для слюды составляет (35 ± 5) млн. лет, тогда как возраст, определенный для образца граната - (306 ± 36) млн. лет. Такое несоответствие двух результатов может быть объяснено тем, что породы в своей истории были подвергнуты сильному термическому воздействию.

Таблица 5. Режимы травления некоторых природных кристаллов

Образец	Травитель	Температура, °C	Время
Мусковит	40% HF	23	1.5 ч
Флогопит	40% HF	23	10 мин
Биотит	20% HF	23	2 мин
Апатит	WO ₄	100	8ч
Гранат	50N NaOH	145	3ч
		225	24ч
Циркон	4NaOH	23	10 мин
	15KOH		
	6LiOH H ₂ O 2H ₂ O		
Сфен	1HF	23	10 мин
	2HNO ₃		
	3HCl		
	6H ₂ O		

Таблица 6. Результаты измерения трекового возраста исследуемых кристаллов

Образец	Трековый возраст, млн. лет
Мусковит - 1	29 ± 3 - внеш. детектор
	31 ± 3 - внутр. детектор
Флогопит	47 ± 5
Апатит - 1	105 ± 12
Апатит - 2	82 ± 9
Циркон - 1	15 ± 1
Циркон - 2	17 ± 2
Гранат - 1	1.6 ± 0.2
Гранат - 2	22 ± 3
Гранат - 3	0.5 ± 0.1
Мусковит - 1541	34 ± 4
Мусковит - 1542	35 ± 4
Биотит - 1543	37 ± 4
Гранат - 1544	306 ± 36

Были измерены длины треков в одном из образцов мусковита (1542), а также в кристаллах граната. Результаты измерений показаны на рис. 5 в виде гистограмм. Из гистограм и сравнения температур отжига треков в мусковите и гранате (таблица 7) можно сделать вывод, что примерно (35 ± 5) млн. лет назад породы в этой местности подверглись нагреву приблизительно в 550 - 600°C, в результате чего треки в слюдах полностью отожились, а в гранате - частично; абсолютный возраст пород составляет >306 млн. лет.

Таким образом, была прослежена приблизительная термическая история пород данной местности.

Таблица 7. Условия сохранения треков в мусковите и гранате

Минерал	Температура отжига треков в течение 1 ч, °C		
	Полный отжиг	50%-ный отжиг	Начало отжига
Мусковит	550		275
Гранат	690	665	560

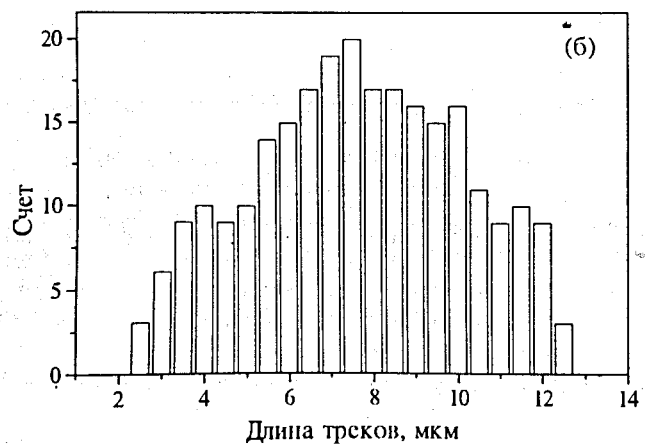
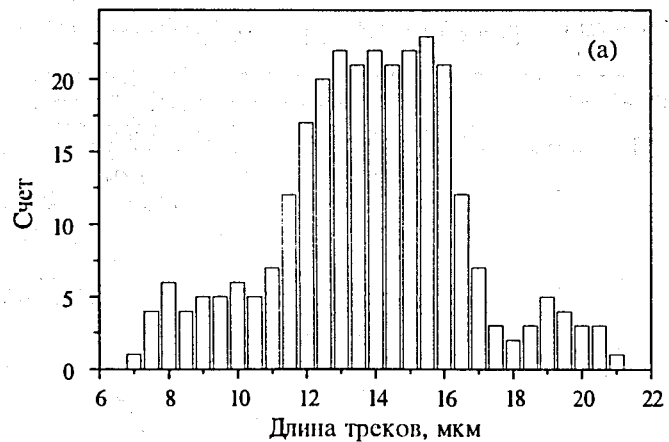


Рис. 5. Спектр длин треков (а) в мусковите (1542), (б) в гранате (1544)

6. ИСПОЛЬЗОВАНИЕ ТТДЯ В ЭКСПЕРИМЕНТАХ ПО ЭЛЕКТРОЯДЕРНОМУ СПОСОБУ ПОЛУЧЕНИЯ ЭНЕРГИИ

Одной из целей исследований, проводимых в ЛВЭ по проекту "Энергия", является оптимизация условий генерации нейтронов в массивных блоках тяжелых металлов под действием релятивистских ядерных пучков.

ТТДЯ были использованы в экспериментах на установке "Свинцовый блок"- протяженной свинцовой мишени с размерами 50 x 50 x 80 см³, проведенных с ускоренными на синхрофазотроне ядрами ¹²C с энергией 18 ГэВ.

Метод ТТДЯ параллельно с другими методами применялся для определения таких величин, как число ядерных взаимодействий внутри мишени, пространственное распределение плотности потока нейтронов в мишени и замедлителя, альbedo нейтронов на границе свинец - вода (замедлитель).

Лавсановые детекторы в контакте с урановыми фольгами с размерами $d = 1$ мм, $S = 50$ мм² были расположены вдоль узких щелей в свинцовой мишени на расстоянии от оси пучка $R = 10, 15,$ и 25 см, а также по длине и высоте замедлителя - ванны из органического стекла, наполненной водой.

На рис. 6 показаны распределения плотности потока нейтронов внутри мишени, где Z - расстояние от переднего края мишени, R - расстояние от оси пучка. Уменьшение плотности треков осколков деления по мере удаления от оси пучка имеет чисто геометрический смысл и ее линейный спад свидетельствует о слабом поглощении замедляющихся нейтронов в мишени.

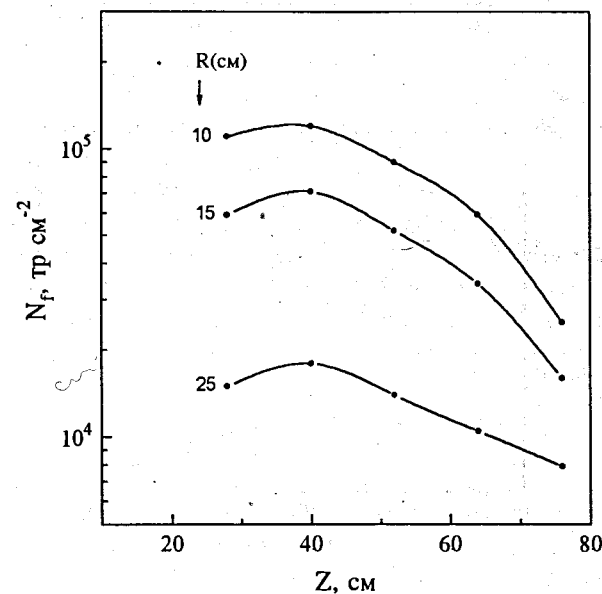


Рис. 6. Распределение плотности потока нейтронов внутри мишени

На рис. 7 показаны распределения плотности потока нейтронов по длине ($R = 28$ см) и высоте замедлителя. Как видно из рис. 6 и 7(а), распределение плотности потока нейтронов по длине замедлителя по форме своей почти точно повторяет распределение внутри мишени, где деление ²³⁸U быстрыми нейтронами

должно играть заметную роль. Подобие этих распределений можно понять как следствие изотропного распространения нейтронов от мест их генерации.

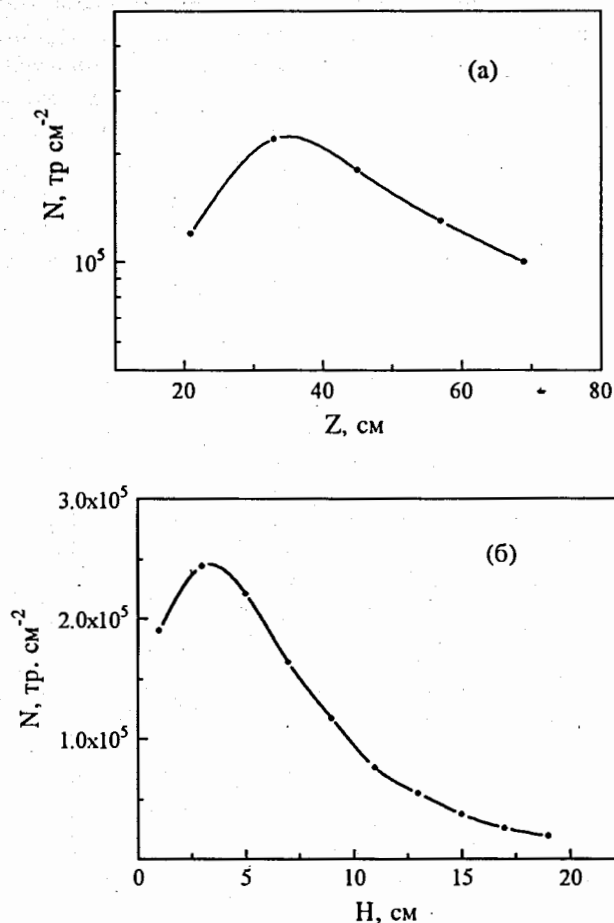


Рис. 7. Распределение плотности потока нейтронов (а) по длине, (б) по высоте замедлителя

Как видно из рис. 7(б), поле нейтронов фактически полностью локализуется в водном слое толщиной 20 см. Распределение имеет максимум на высоте 3 см, что свидетельствует о том, что на первых трех сантиметрах не все нейтроны замедлены до тепловых скоростей.

Для измерения вероятности поглощения нейтронов в мишени (свинце) были отдельно измерены падающая и отраженная составляющие скалярного поля на границе свинец - вода. Облучались два лавсановых детектора в контакте с урановыми фольгами, защищенные с обратной стороны кадмиевым экраном. Детекторы были размещены на дне ванны с водой. С помощью третьего детектора, защищенного с двух сторон, измерялся надкадмиевый фон. Значение вероятности поглощения нейтронов в свинце было найдено равным 0.59 ± 0.01 .

Число актов деления, т.е. число нейтронов, поглотившихся ядром урана и вызвавших его деление в фольге, было определено из плотности треков осколков деления $N_{\text{тр}}$ по формуле:

$$n_n = \frac{\cdot N_{\text{тр}} S_{\text{д}}}{\epsilon K i G} \quad (12)$$

где $S_{\text{д}} = 0.5 \text{ см}^2$ - площадь поверхности урановой фольги, $\epsilon = 0.9$ - эффективность регистрации лавсаного детектора, $K = 2.1 \times 10^{-3}$ - коэффициент самопоглощения, $i = 2$ - число осколков на деление, $G = 1/2$ - геометрический фактор, учитывающий, что регистрируется один из осколков, вылетевших во взаимно противоположных направлениях.

Это значение найдено равным $n_n = 0.59 \times 10^8$.

Полное число нейтронов N , генерированных при облучении свинцовой мишени ускоренными ядрами ^{12}C с энергией 18 ГэВ, найдено из выражения $N = n_n \cdot f \cdot Q$, где f - фактор, учитывающий отношение объемов замедлителя и детектора и отношение макроскопических сечений поглощения в водороде и в детекторе; Q - коэффициент, учитывающий ряд поправок, связанных в том числе и с пространственным распределением плотности потока нейтронов и величиной альбеда на границе свинец - вода (остальные поправки учтены с помощью других методов). Это значение найдено равным $N = 3.0 \times 10^{13}$. Энергозатраты на генерацию одного нейтрона определены равными $(32 \pm 5) \text{ МэВ}$.

На установке "Свинцовый блок" проводятся эксперименты также с другими легкими ядрами и протонами. ТГДЯ были использованы в экспериментах по выявлению степени роста числа генерируемых протонами нейтронов с ростом энергии пучка. Свинцовая мишень облучалась протонами с энергией 3.65, 5.0, 6.5 и 8.1 ГэВ. При каждом облучении урановые фольги в контакте с лавсановыми детекторами располагались в замедлителе на расстоянии $Z = 33$ см от переднего края мишени, где достигается максимум пространственного распределения нейтронов (см. рис. 7(а)).

Значения плотности треков осколков деления от урановых фольг были нормированы к показаниям мониторов пучка (ионизационные камеры, алюминиевые мониторы). Зная значение числа нейтронов, генерируемых

протонами с энергией 3.65 ГэВ из предыдущих экспериментов - (101 ± 20) н/р, получили это значение при других энергиях протонов. На рис. 8 представлена зависимость числа нейтронов, генерированных одним протоном, от энергии пучка.

После измерения плотности треков на лавсановых детекторах, которые были расположены на входном канале мишени и служили мониторами пучка, детекторы были перетравлены для наглядного изображения профиля пучка.

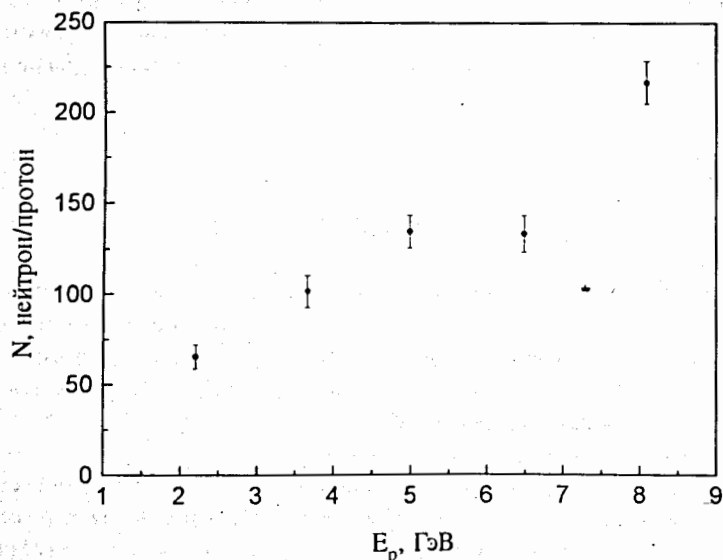


Рис. 8. Зависимость числа генерируемых нейтронов в свинцовой мишени от энергии протонов

В ЗАКЛЮЧЕНИИ приведены основные результаты работы:

1. Усовершенствован метод определения содержания тория в образцах с помощью тепловых нейтронов и γ -квантов. Существенной новизной в методе является то, что вместо отношения полных сечений деления ядер γ -квантами, которое необходимо знать при определении содержания тория данным методом, определялось отношение выходов реакций деления ядер U и Th тормозным излучением с данной максимальной энергией с помощью "бесконечно толстых" источников осколков деления - металлических пластинок U и Th. Чувствительность метода достигает 10^{-8} г/г.

2. Исследовано поведение отношения выходов реакций деления ядер U и Th при максимальных энергиях тормозного излучения от 7 МэВ до 23 МэВ. Данное отношение менялось от 1.7 до 3.2. На этой основе впервые предложена

методика определения содержания U и Th в образцах с помощью двойного γ -облучения разных энергий.

3. Исследования по определению U и Th с помощью двойного γ -облучения стали основой для разработки метода анализа образцов, сильно загрязненных техногенным плутонием.

4. Разработана методика определения пространственного распределения элементов групп Bi-Pb и Au-Pt путем облучения образцов ускоренными ионами ^{12}C с энергией 9.1 и 13.2 МэВ/нукл. Экспериментально выбраны оптимальные условия отжига фторфлогопита с целью повышения чувствительности метода - устранения фона от треков ядер отдачи и составных ядер.

5. Разработан и предложен метод определения содержания Be в образцах с помощью γ -квантов с энергией $4.6 \leq E_\gamma \leq 9$ МэВ. Выведена полумпирическая формула для эффективного рабочего слоя вещества для α -частиц с энергией 1.498 МэВ, испускающихся в результате распада ядра ^8Be первого возбужденного уровня (2.9 МэВ), которое образуется при реакции $^9\text{Be}(\gamma, n)^8\text{Be}^*$. Чувствительность метода достигает 10^{-6} г/г бериллия в образце.

6. Проведены эксперименты по датированию образцов слюд - мусковита, флогопита, биотита, кристаллов апатита, граната, циркона и сфена. Определены оптимальные условия травления граната, а также определена его эффективность регистрации при данном режиме травления. На основе разницы температур сохранения треков в гранате и мусковите дана приблизительная оценка термической истории пород из Баян-Нуур, Монголия.

7. ТТДЯ были использованы в проведении экспериментов по проекту "Энергия" в ЛВЭ на установке "Свинцовый блок" с пучком ядер ^{12}C с энергией 18 ГэВ, ускоренных на синхрофазотроне. Методом ТТДЯ, параллельно с другими методами, определены такие величины, как число ядерных взаимодействий внутри мишени, пространственное распределение плотности потока нейтронов в мишени и замедлителя, альbedo нейтронов. ТТДЯ использованы также в экспериментах по выявлению степени роста генерируемых протонами нейтронов с ростом энергии пучка.

Основное содержание диссертации изложено в работах:

1. Otgonsuren O., Enkhjin L., Gerbish Sh., Perelygin V.P., Petrova R.I. On Determination of Th Concentration in Specimens with the Aid of Gamma-Rays (18; 20 MeV) and Alphas. Proc. of the Intern. Workshop "Solid State Nuclear Track Detectors and Their Applications", Dubna, 1990, p.135-138, 1990

2. Гэрбиш Ш., Далхсурэн Б., Перелыгин В.П., Маслов О.Д., Попеко Г.С., Отгонсурэн О., Белов А.Г., Гаврилов К.А., Норов Н., Петрова Р.И., Рийжээ А.,

Энхжин Л. Способы инструментального определения содержания U и Th с использованием микротрона. Сообщения ОИЯИ 18-90-427, Дубна, 1990

3. Отгонсурэн О., Энхжин Л., Гэрбиш Ш., Перельгин В.П., Петрова Р.И. Определение содержания Th в образцах с помощью γ -квантов и α -частиц. Препринт ОИЯИ 314-91-502, Дубна, 1991

4. Perelygin V.P., Enkhjin L., Abdullaev I.G. On Determination of U and Th Concentrations in Soils and Building Materials. Proc. of the Second Workshop on Radon Monitoring in Radioprotection, Environmental and/or Earth Sciences, Nov.-Dec. 1990, Trieste, p. 213-217, 1991

5. Otgonsuren O., Enkhjin L., Gerbish Sh., Perelygin V.P., Petrova R.I. On Determination of Th Concentration in Specimens by Means of Gamma Rays and Alpha Particles. Radiation Measurements, vol. 24, No. 1, p. 83-86, 1995

6. Perelygin V.P., Chuburkov Yu.T., Zwara I., Kharitonov Yu.P., Enkhjin L., Drobinina T.P., Belov A.G. On Determination of Man-Made Plutonium Content in Natural Samples, Plants and Living Species. Book of Abstracts of 3rd Intern. Meeting "Nuclear Physics for Protection of the Environment", 23-28 May 1995, Dubna, p. 55, 1995

7. Perelygin V.P., Petrova R.I., Enkhjin L., Bankova G.G., Kushin V.V., Khokhlov N.B., Belogurov O.G., Vinokurov S.F., Abdullaev I.G., Murtazaev Kh. Selective Track Radiography of Bi-Pb and Au-Pt in Minerals with Accelerated ^{12}C Ions. Proc. of the Intern. School-Seminar on Heavy Ion Physics, 10-15 May 1993, Dubna, vol. 2, p. 513-515, 1993

8. Абдуллаев И.Г., Муртазаев Х., Перельгин В.П., Петрова Р.И., Энхжин Л. Исследование треков осколков деления в природных стеклах. Препринт ОИЯИ P14-91-503, Дубна, 1991; Атомная энергия, т. 74, вып. 5, с. 452-454, 1993

9. Perelygin V.P., Petrova R.I., Enkhjin L., Abdullaev I.G., Otgonsuren O. Determination of the Track Age of Some Terrestrial and Meteoritic Minerals. Radiation Measurements, vol. 25, Nos 1-4, p. 525-526, 1995

10. Авт. Свид. 1827599 G 01 N 23/00. Способ определения содержания бериллия. Перельгин В.П., Энхжин Л. ОИПОТЗ 1993, 26

11. Enkhjin L., Perelygin V.P. Determination of Microquantities of Be in Samples Using α -sensitive Track Etch Detectors. Radiation Measurements, vol. 25, Nos 1-4, p. 359-362, 1995

12. Perelygin V.P., Enkhjin L., Belov A.G. Determination of Microquantities of Be in Samples Using α -sensitive Track Etch Detectors. Sci. Rep. 1993-1994, FLNR, JINR, p. 312-313, 1995

13. Chultem D., Damdinsuren Ts., Enkhjin L., Lomova L.A., Perelygin V.P., Tolstov K.D. The Space Distribution of Neutrons Generated in Massive Lead Target by Relativistic Nuclear Beam. Nucl. Tracks Radiat. Meas., vol. 22, Nos 1-4, p. 657, 1993

14. Chultem D., Damdinsuren Ts., Enkhjin L., Lomova L.A., Perelygin V.P., Tolstov K.D. The Relativistic Nuclei Beam Monitoring by Means of High Threshold Fission Chamber. Nucl. Tracks Radiat. Meas., vol. 22, Nos 1-4, p. 559-560, 1993

15. Chultem D., Damdinsuren Ts., Dyachenko V.M., Enkhjin L., Lomova L.A., Perelygin V.P., Tolstov K.D. Measurement of the Neutron Component in a Shower Generated in a Lead Target by Relativistic Nuclear Beam. Preprint of JINR E1-94-407, Dubna, 1994

Рукопись поступила в издательский отдел
9 апреля 1996 года.