

сообщения
объединенного
института
ядерных
исследований
дубна

5296/2-80

3/4-80
18-80-584

В.Я.Выропаев, Ю.Н.Бурмистенко

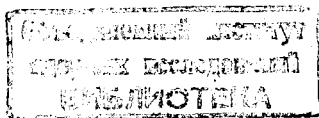
К ВОПРОСУ О ПРИМЕНЕНИИ
СУРЬЯНО-БЕРИЛЛИЕВЫХ ИСТОЧНИКОВ
НЕЙТРОНОВ
В АКТИВАЦИОННОМ АНАЛИЗЕ

1980

ВВЕДЕНИЕ

Аналитический контроль в современном производстве имеет первостепенное значение. Как отмечалось в работе ^{/1/}, в организации аналитической службы ряда отраслей народного хозяйства ведущую роль могут и должны играть ядерно-физические методы элементного анализа. Арсенал источников излучений в ядерной физике довольно широк - от изотопов до мощных ускорителей и атомных реакторов, при этом выбор источника излучений определяется масштабом аналитических задач. Стремление производителей, использующих ядерно-физические методы анализа, к простоте источников излучений стимулировало в последнее десятилетие применение изотопных источников нейтронов для активационного анализа ^{/2,3,4/}. На первый взгляд кажется, что наиболее удобным источником нейтронов является спонтанно делящийся изотоп калифорний-252 ^{/5,6,7/}. Однако при более детальном рассмотрении выясняется, что производится этого изотопа сравнительно небольшое количество, стоимость его довольно высока и создать хотя бы малую серию устройств на основе этого изотопа с достаточно высоким выходом нейтронов порядка 10^{10} н/с практически невозможно. Эта же ситуация характерна для всех нейтронных источников, основанных на (α, n) -реакции. Авторы настоящей работы обратились к (γ, n) -реакции на бериллии с использованием гамма-излучения изотопа ¹²⁴Sb. Перспективы применения сурьмяно-бериллиевых источников нейтронов рассмотрены в ряде работ ^{/8,9,10/}. К серьезным недостаткам таких источников относят короткий период полураспада изотопа ¹²⁴Sb / $T_{1/2} = 60$ дней / и высокий уровень активности, требующий мощной защиты ^{/11/}. Тем не менее согласно работе ^{/12/} затраты на получение одной единицы нейтронной интенсивности такого источника на два порядка меньше, чем (α, n) -источников. Более того, в работе ^{/13/} описана транспортабельная /на трайлере / лаборатория активационного анализа, использующая ¹²⁴Sb-Be-источник активностью 6000 кюри, стоимость его /с учетом периодического восстановления / составляет 12 тыс. долларов в год.

Источник этот обеспечивает выход нейтронов около 10^{11} н/с, чего нельзя достичь с каким-либо другим изотопным источником нейтронов, а вопросы защиты и замены источника на сегодня являются чисто организационно-техническими. При современной



широкой сети различных типов атомных реакторов производство любого нужного количества изотопа ^{124}Sb также не представляет проблемы.

1. ПОСТАНОВКА ЗАДАЧИ

Обращаясь к использованию мощного ^{124}Sb источника нейтронов, авторы настоящей работы исходили из следующих предположений: в работах /5,14,15/, выполненных в Лаборатории ядерных реакций, была показана высокая эффективность использования графитового замедлителя с целью получения резонансных нейтронов для проведения активационного анализа геологических проб на содержание целого ряда элементов, имеющих резонансный захват в области эпитепловых нейтронов, и прежде всего анализа золотосодержащих пород. При этом в качестве источника гамма-квантов используется тормозное излучение микротрона / $E_{\gamma} = 16$ МэВ и $i_{\gamma} = 25$ мкА/, в качестве конвертора нейтронов - металлический бериллий /общий вес - порядка 70 кг/, размеры графитовой кладки - 130x130x130 см.

Эта сборка обеспечивает анализ реальных пород в количестве до 1000 образцов в сутки /при весе каждой пробы не менее 50 г/ с чувствительностью 0,1 г/т по Au и 1 г/т по Ag.

Если же в такую сборку ввести изотопный источник ^{124}Sb достаточной активности /вместо того, чтобы использовать тормозное излучение микротрона/, то фактически можно достичь такого же эффекта по чувствительности и производительности. При этом, поскольку средняя энергия фотонейтронов от ^{124}Sb на два порядка ниже средней энергии фотонейтронов микротрона, в общем потоке нейтронов в бериллий-графитовой сборке доля эпитепловых нейтронов будет больше в случае источника ^{124}Sb .

Предварительной оценке всего вышеизложенного и посвящена данная работа.

2. РАСЧЕТНАЯ ОЦЕНКА ВЫХОДА ФОТОНЕЙТРОНОВ

Авторами выполнен расчет потока фотонейтронов для бериллиевых сфер диаметром 80, 120 и 200 мм, в центре которых помещен точечный источник ^{124}Sb активностью 1 кюри. Расчет выполнялся методом Монте-Карло на ЭВМ М-222 при следующих допусках:

1. После первого акта комптоновского рассеяния на ядре ^9Be гамма-квант изотопа ^{124}Sb с $E_{\gamma} = 1,692$ МэВ имеет энергию ниже порога реакции $^9\text{Be}(\gamma, n)$, равного $E_{\text{пор.}} = 1,668$ МэВ.

2. Длина пробега гамма-кванта с энергией $E_{\gamma} = 1,7$ МэВ в бериллии вычислялась по формуле

$$S = -\ln(c) / 0,0813,$$

где S - длина пробега, см; c - случайное число из интервала /0,1/; 0,0813 - полное сечение взаимодействия гамма-квантов с $E_{\gamma} = 1,7$ МэВ для металлического бериллия, см⁻¹ /16/.

В случае, когда S получалось меньше радиуса сферы, считалось, что в конечной точке пробега возникает нейтрон со статистическим весом ω_0 , определяемым сечением реакции $^9\text{Be}(\gamma, n)^8\text{Be}$, которое оценивается для $E_{\gamma} = 1,692$ МэВ в пределах 1-2 мбарн /13, 18, 19/, и нами выбрано значение 1,2 мбарн.

3. При прослеживании истории нейтрона учитывался только эффект упругого рассеяния нейтронов, т.к. сечения других процессов малы. Рассмотрение истории нейтрона завершалось его выходом из Be -сферы, после чего переходили к очередной истории γ -кванта.

Для каждой сферы было разыграно более 20 тыс. историй нейтронов. Результаты расчета представлены в табл.1.

Таблица 1

Диаметр бериллиевой сферы, мм	80	120	200
Выход нейтронов на 1 Ки ^{124}Sb , $\times 10^7$ н/с	0,9	1,25	1,87

3. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ОЦЕНКА ВЫХОДА НЕЙТРОНОВ

Работа выполнялась известным методом марганцевой ванны /20/. Сурьяно-бериллиевый источник представлял собой куб металлического Be с ребром 170 мм, в центре которого помещался источник ^{124}Sb активностью 0,42 Ки. Источник ^{252}Cf с потоком $1,29 \cdot 10^8$ н/с служил эталоном. Время активации - 3 часа.

Активность марганца по трем пробам измерялась на сцинтиллаторе. Полученный удельный поток на 1 Ки ^{124}Sb составил $1,7 \cdot 10^7$ нейтр./с·Ки. Полученный результат хорошо согласуется с расчетным для сферы диаметром 180 мм.

4. РАСЧЕТНАЯ ОЦЕНКА ПРОСТРАНСТВЕННО-ЭНЕРГЕТИЧЕСКОГО РАСПРЕДЕЛЕНИЯ НЕЙТРОНОВ

Вычислялись плотности потока нейтронов на различных расстояниях от источника ^{124}Sb в следующих энергетических интервалах: 0-0,6 эВ; 0,6-10,0 эВ; 10,0-100,0 эВ; 0,0-24,0 кэВ.

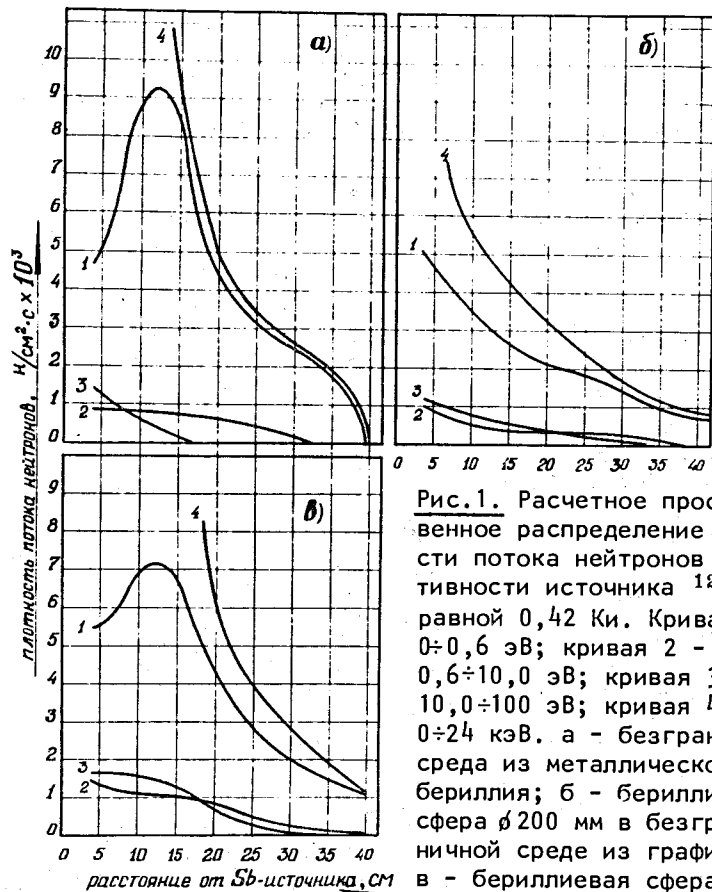


Рис.1. Расчетное пространственное распределение плотности потока нейтронов при активности источника ^{124}Sb , равной 0,42 Ки. Кривая 1 - $0 \div 0,6$ эВ; кривая 2 - $0,6 \div 10,0$ эВ; кривая 3 - $10,0 \div 100$ эВ; кривая 4 - $0 \div 24$ кэВ. а - безграничная среда из металлического бериллия; б - бериллиевая сфера $\phi 200$ мм в безграничной среде из графита; в - бериллиевая сфера $\phi 200$ мм в графитовой среде $\phi 800$ и $H=1200$ мм.

Расчет проводился для следующих условий:

1. Бесконечная бериллиевая сфера с источником ^{124}Sb в центре.

2. Бериллиевая сфера диаметром 200 мм с источником ^{124}Sb в центре, помещенная в бесконечный графитовый замедлитель.

3. Бериллиевая сфера диаметром 200 мм с источником ^{124}Sb в центре, помещенная в графитовый цилиндр $\phi = 800$ мм, $H = 1200$ мм.

После образования нейтрона его история прослеживалась /аналогично тому, как описано в предыдущем разделе/ до выхода его из графитовой сборки конечных размеров, либо до уменьшения его статистического веса на два порядка. Нейтронные сечения взяты из работы $^{21}\text{с}$ с учетом только эффекта упругого рассеяния. Результаты расчетов представлены на рис.1. Кроме того, стан-

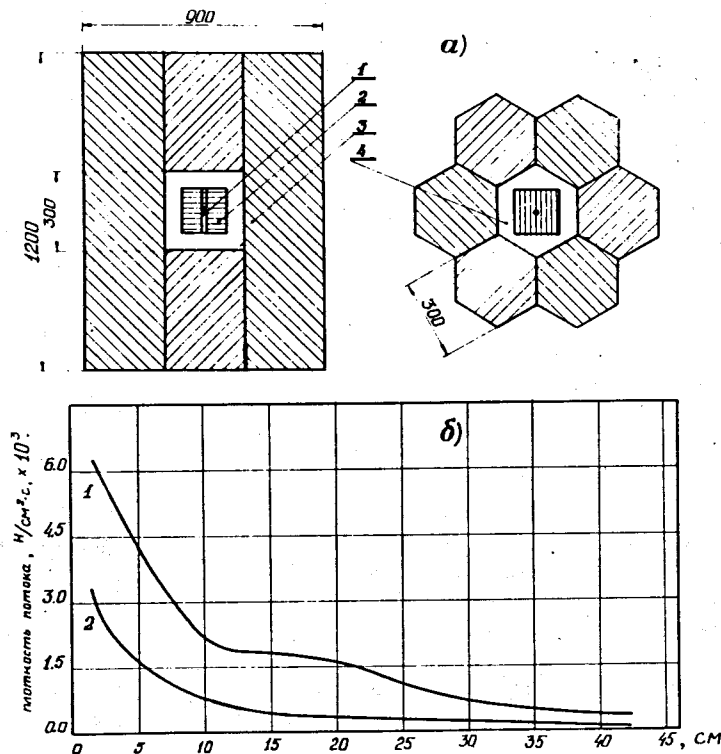


Рис.2. Схема экспериментальной установки и пространственное распределение в ней плотности потоков тепловых и эпитепловых нейтронов. а - экспериментальная сурьяно-бериллий-графитовая сборка: 1 - источник ^{124}Sb активностью 0,42 Ки, 2 - блок металлического бериллия $17 \times 17 \times 17$ см, 3 - графит, 4 - пространство для образцов; б - распределения плотности потока нейтронов в сборке "а", полученные экспериментально: 1 - тепловые и 2 - эпитепловых нейтроны.

дартным методом сравнения активации золотых фольг ^{197}Au , облучаемых в поле нейтронов с кадмиевым и без кадмиевого фильтра и расположенных на разных расстояниях от источника ^{124}Sb , были измерены и вычислены плотности потоков тепловых и эпитепловых нейтронов /см. рис.26/.

5. ОПИСАНИЕ ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЙ УСТАНОВКИ

На рис.2а представлена схема экспериментального устройства. Внутри призмы из шестигранных блоков графита /сторона - 300 мм, высота - 1200 мм/ помещается бериллиевый куб с ребром 170 мм. В центре куба расположен источник ^{124}Sb активностью 0,42 Ки. Активируемые образцы могут располагаться как в зазоре между бериллием и графитом, так и внутри Ве-куба. В работе использовались образцы весом 500 г / $d = 100$ мм, $h = 40$ мм/ и 40 г / $d = 45$ мм, $h = 23$ мм/, упакованные в полиэтиленовые контейнеры. Облучение проводилось общим потоком нейтронов и закадмиевыми нейтронами. Времена облучения - 20-100 ч, времена выдержки также различные. Измерения выполнялись с помощью Ge(Li) - детектора с активным объемом 70 см³.

6. РЕЗУЛЬТАТЫ ПО АКТИВАЦИИ ОБРАЗЦОВ. ОБСУЖДЕНИЕ

В работе использовались образцы золотосодержащих руд с концентрацией золота в пределах $1-6 \cdot 10^{-5}$ г/г. В качестве эталонов брались стандартные образцы. Спектры некоторых активированных образцов представлены на рис.3. По результатам спектрометрии вычислены пороги определения золота, за которые принималась тройная среднеквадратичная флуктуация фона под фотопиком ^{198}Au $E_{\gamma} = 411,8$ кэВ, выраженная в единицах концентрации золота по формуле

$$L = \frac{3\sqrt{2} \cdot N_{\Phi}}{\eta},$$

где L - порог определения золота, г/т; N_{Φ} - площадь "пьедестала" под фотопиком; η - чувствительность установки, выраженная в площади фотопика 411,8, отнесенной к 1 г/т золота.

Исходные данные и результаты представлены в табл.2. Образцы при этом расположены на поверхности бериллиевого куба.

При активации образцов в кадмиевом экране в объеме бериллиевого куба на расстоянии 40 мм от источника ^{124}Sb чувствительность повышается, и при активности в 100 Ки ^{124}Sb можно ожидать, что порог определения золота в образце весом 40 г будет порядка 0,2 г/т.

Интересно отметить сравнительную эффективность кадмиевых экранов в случае сурьяно-бериллий-графитовой сборки и в случае, например, микротрон-бериллий-графитовой установки.

В первом случае максимальная энергия нейтронов $E_n^{\text{Sb-Be}} = 24$ кэВ, во втором - $E_n^{\text{M-Be}} = 3$ МэВ. Эта величина сравнима со средней энергией нейтронов ряда других источников: нейтронов деления

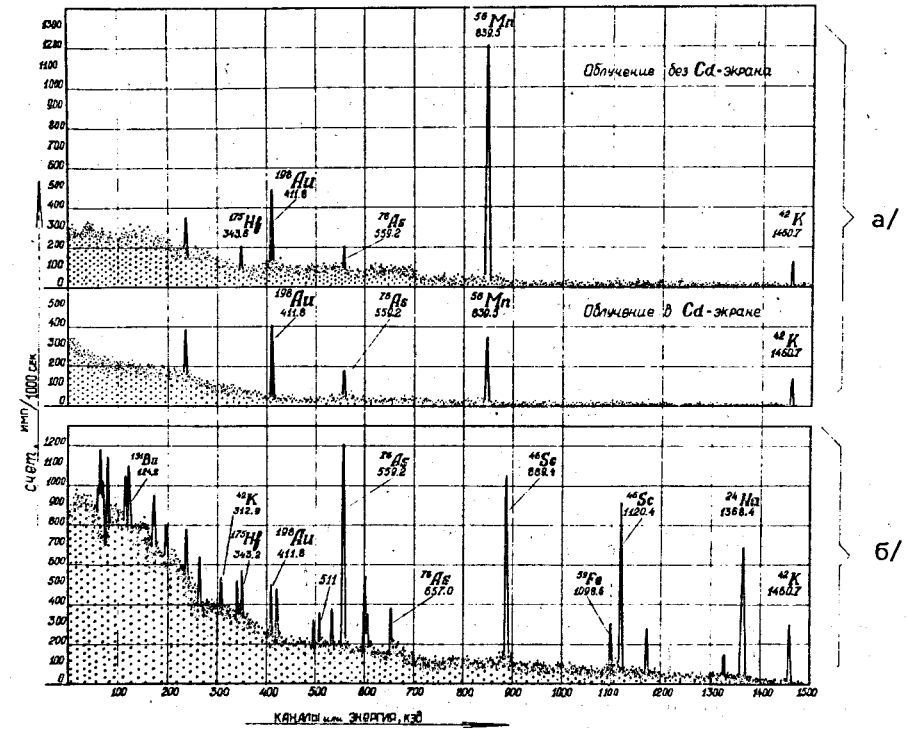


Рис.3. Примеры гамма-спектров образцов, активированных в сурьяно-бериллий-графитовой сборке /рис.2/ при активности источника ^{124}Sb , равной 0,42 Ки. а/ Эталонный образец РЗС-1, $t_{\text{обл.}} = 100$ ч, $t_{\text{охл.}} = 0,5$ ч, концентрация Au = 50 г/т, вес пробы - 40 г. б/ Золотоносная руда с концентрацией Au = 14,4 г/т, $t_{\text{обл.}} = 40$ ч, $t_{\text{охл.}} = 24$ ч, вес пробы - 500 г, облучение без кадмиевого экрана.

урана, тория, плутония, калифорния-252 / $E_n^{\text{CP}} = 2$ МэВ/, (α, n) - источников на бериллии / $E_n^{\text{CP}} = 4$ МэВ/, поэтому приводимые ниже результаты распространяются на все источники нейтронов.

При активации образцов в сурьяно-бериллий-графитовой сборке в кадмии и без него площадь фотопика 411,8 кэВ остается неизменной, тогда как в случае остальных источников нейтронов она падает в 2-3 раза. Площадь "пьедестала" под фотопиком в обоих случаях снижается в 1,5-2 раза. Это свидетельствует о том, что ^{124}Sb - графитовая сборка обеспечивает большой вклад нейтронов в резонансную область энергий и Cd-экран

Таблица 2

№ пп	Масса образца, г	Разм. образ-ца, мм	Время акти-вации, сутки	Время "охлажд.", сутки	Время изме-рения, с	Наличие экранов-тваци	Порог опреде-ления при акти-вации ^{124}Sb = 0,42 Ки, г/т	Экстрапол. порог определения при активации ^{124}Sb = 100 Ки, г/т
1.	500	$\varnothing=100 \times 40$	1,7	1,0	1000	нет	10	0,5
2.	40	$\varnothing=45 \times 23$	2,0	5мин	1000	Cd	8,6	0,4
3.	40	$\varnothing=45 \times 23$	2,0	30мин	1000	нет	9,7	0,6
4.	40	$\varnothing=45 \times 23$	2,0	1,0	1000	нет	9,0	0,5
5.	40	$\varnothing=45 \times 23$	2,0	1,0	1000	Cd	8,0	0,3

Таблица 3

Элемент [23]	Содержание в породе	Изотоп, его фотопик, выход [24]	Период полурас-пада, $T_{1/2}$	Сечение захвата тепловых нейтронов, барн	Резонансный интеграл, барн; его область, [25]
Золото	до 0,1 г/т	$\text{Au}-198$ 412кэВ, 95%	27 суток	98,8	1550 барн 4,8 эВ
Мышьяк	до 2 кг/т	$\text{As}-76$ 559кэВ, 43%	26,8 часа	4,4	63 барн $10^2 - 10^3$ эВ
Сурьма	до 1 кг/т	$\text{Sb}-122$ 564кэВ, 66%	2,75 суток	6,2	180 барн 5,8 эВ
Марганец	до 1 кг/т	$\text{Mn}-56$ 847кэВ, 99%	2,6 часа	13,3	14,0 барн $10^2 - 10^3$ эВ
натрий	до 15 кг/т	$\text{Na}-24$ 1368кэВ, 100%	15 часов	0,53	0,31 барн 1000 эВ

в этой сборке при анализах на золото обязателен. Как правило, фон под фотопиком золота /412 кэВ, $T_{1/2} = 2,7$ суток/ объясняется комптоновским рассеянием гамма-квантов, испускаемых изотопами, образующимися при активации золотоносных руд /см. табл. 3 /.

Ядерно-физические константы таблицы показывают, что фон под фотопиком 412 кэВ можно снижать целым рядом приемов: а/ облучать в Cd-экране, отсекая активацию тепловыми нейтронами; б/ установить разумное время "охлаждения" образцов для распада Mn, As и Na; в/ для "борьбы" с Sb использовать сурьмяные экраны, а с As - мышьяковистые экраны для "выедания" нейтронов с энергией $E_n = 5,8$ эВ и $E_n = 10-1000$ эВ соответственно;

г/ наконец, применяя резонансные фильтры из золота, измеряя два образца /один облучается с Au-экраном, другой-без/, по разности снятых спектров можно получить практически бесфоновый спектр золота /26/.

На описанной сборке найдены также пороги определения ряда элементов в реальных породах с использованием тепловых нейтронов /экстраполяция на источник ^{124}Sb активностью 100 Ки/: Sc - 0,01%; As - 0,005%; Mn - 0,005%; Sm - 0,001%; Jn - 0,0005%; W - 0,005%; Hg - 0,02%. Однако, поскольку авторов интересовала в основном область резонансной активации, данные результаты приводятся для сведения, как пример использования предлагаемой сборки для активации образцов тепловыми нейтронами.

7. ОСНОВНЫЕ ВЫВОДЫ

1. Показана несомненная эффективность и перспективность использования сурьяно-бериллий-графитовыхборок для нейтронно-активационного анализа горных пород и руд на содержание элементов, имеющих достаточно высокие сечения активации на резонансных нейтронах. Используя при активации различные фильтры /кадмий, бор, сурьму, мышьяк, гадолиний и др./, а также другие приемы, основанные на ядерно-физических свойствах элементов, можно существенно повысить селективность активации, т.е. селективность анализа.

2. Полученные результаты по пространственно-энергетическому распределению нейтронов позволяют создать такую систему сурьяно-бериллий-графитовой сборки, в которой в поле равномерной плотности нейтронного потока можно одновременно облучать 100 и более образцов весом 50-70 г каждый, что при активности источника ^{124}Sb 100-300 Ки обеспечит производительность анализов на золото порядка 100 проб/сутки с чувствительностью 0,3-0,5 г/т.

3. Ядерно-физические характеристики сурьяно-бериллий-графитовой сборки при их реализации для нейтронно-активационного анализа позволяют создавать устройства, отличающиеся исключительной эксплуатационной простотой и безопасностью, низкой стоимостью, доступностью для широкого круга потребителей /от крупных производственных объединений до небольших экспедиционных партий/, что позволяет их рекомендовать к использованию во многих отраслях народного хозяйства страны.

Авторы весьма признательны Георгию Николаевичу Флерову за постановку задачи, пристальное внимание к работе и тщательное обсуждение результатов.

ЛИТЕРАТУРА

1. Флеров Г.Н., Выропаев В.Я. Возможные применения методов ядерной физики в науке и технике. В кн.: Труды III Совещания по использованию ядерно-физических методов для решения научно-технических и народнохозяйственных задач. ОИЯИ, P18-12147, Дубна, 1979.
2. Neutron Sources and Applications. Proc. of the American Nuclear Society National Topical Meeting. Augusta, April 1971. USAEC Conf. 710402.
3. Kuusi J. The Application of Isotopic Neutron Sources to Chemical Analysis for Process Control in the Metallurgical Industry. Modern Trends in Activation Analysis. J. de Voc, ed. Washington. Nat. Bureau Standards. Spec. Publ. 312, 1969, vol.1, pp.450-456.
4. Strain J.E., Lyon W.S. The Use of Isotope Neutron Sources for Chemical Analysis. Radiochemical Methods of Analysis. Vienna, IAEA, 1965, vol.1, pp.263-275.
5. Выропаев В.Я. ОИЯИ, 14-9615, Дубна, 1976.
6. Ricci E., Handley T.H. Analyt.Chem., 1970, vol.42, pp.378-382.
7. Muller W. Möglichkeiten der Nutzung von ²⁵²Cf. Brussels, Comm. of European Communities, Rep. ITE65, 1971.
8. Courtemanch R., Kushneriuk S.A. Canad.Nucl.Technol., 1966, vol.5, No.2, p.32.
9. Hennely E. Nucleonics, 1961, vol.19, No.3, pp.124-125.
10. Churchill T.R. Production of Short-Lived Radioisotope Tracers into an Sb-Be Source. Radioisotope Tracers in Industry and Geophysics. IAEA, Vienna, 1967, p.271.
11. Кузнецов Р.А. Активационный анализ. Атомиздат, М., 1967, с.36.
12. Бак М.А., Шиманская Н.С. Нейтронные источники. Атомиздат, М., 1969, с.82.
13. Tolmie R.W., Thompson C.J. Field Equipment for Neutron Activation Analysis. Nuclear Techniques and Mineral Resources. IAEA, Vienna, 1969, p.489.
14. Выропаев В.Я. ОИЯИ, 14-9446, Дубна, 1976.
15. Андрейсек К. ОИЯИ, 3-10268, Дубна, 1977.
16. Бета- и гамма-спектрометрия. Под ред. К.Зигбана. Физматгиз, М., 1959.
17. Bülow B., Forkman B. Photoneuclear Cross Sections. In: Nuclear Cross Sections. IAEA, Vienna, 1973.
18. Прайс Б., Хортон К., Спинни К. Защита от ядерных излучений. ИЛ, М., 1959.
19. Kunz W., Schintelmeister J. Tabellen der Atomkerne. Teil II. Z. Kernreaktionen, Bd.1. Die Elemente Neutron bis Magnesium. Akad.-Verl., Berlin, 1965.
20. Физика быстрых нейтронов. Под ред. Дж.Мариона, Дж.Фаулера, т.2. Атомиздат, М., 1966.
21. Huges D.J., Schwarz R.B. Neutron Cross Sections. 2nd Ed., V.N.L., Upton-New York, 1958.
22. Беркурц К., Виртц К. Нейтронная физика. Атомиздат, М., 1968.
23. Мейер В.А., Ваганов П.А. Основы ядерной геофизики. Изд-во ЛГУ, Л., 1978, с.317-321.
24. Lederer C., Hollander J., Perlman J. Tables of Isotopes, N.Y., J.Wiley and Sons, 1968.
25. Handbook on Nucl.Activation Cross-Sections. IAEA, Vienna, 1974, pp.3-13, 18-81.
26. Гамбарян Р.Г., Штань А.С. АЭ, 1968, т.25, вып.2, с.111-117.

Рукопись поступила в издательский отдел
28 августа 1980 года.