

сообщения
объединенного
института
ядерных
исследований
Дубна

+

5211/2-80

3/11-80

18-80-599

Ю.Г.Тетерев, Ю.С.Замятнин, А.М.Кучер

ИСТОЧНИК ФОТОНЕЙТРОНОВ НА ОСНОВЕ ^{124}Sb
ДЛЯ НЕЙТРОННО-АКТИВАЦИОННОГО АНАЛИЗА

1980

Широкое применение нейтронно-активационного анализа, при котором возможны массовые анализы на местах, требует создания простых и дешевых источников нейтронов большой интенсивности. Такие крупные установки, как реакторы и ускорители, позволяющие получать наиболее интенсивные потоки нейтронов и максимальную чувствительность анализов, имеют ограниченное пространство, и не везде могут использоваться. Поэтому для широкого применения наиболее целесообразными являются радиоизотопные источники нейтронов, не требующие для своей эксплуатации сложных устройств, высококвалифицированного обслуживания и наличия коммуникаций.

В качестве таких источников нейтронов, заслуживающих наибольшего внимания, могут рассматриваться: источники фотонейтронов $^{124}\text{Sb}(\gamma) + \text{Be}$, генерирующие нейтроны с энергией 24 кэВ^{1/1}, и источники нейтронов спонтанного деления ^{252}Cf . В настоящей работе проведено исследование возможности и целесообразности применения этих источников для нейтронно-активационного анализа геологических проб на содержание золота и других элементов, причем основное внимание было уделено изучению характеристик сурьяно-бериллиевого источника. Аналогичные исследования проведены на источнике ^{124}Sb небольшой активности /0,42 Ки/ в работе /2/.

Получение нейтронов с помощью радиоактивного изотопа ^{124}Sb / $T_{1/2} = 60,2$ дн./ основано на использовании сопровождающих β -распад γ -квантов с энергией 1,692 МэВ, несколько превышающей порог реакции (γ, n) на ^9Be / $E_Q = -1,665$ МэВ/. Сечение реакции (γ, n) вблизи порога составляет 1,2 мб^{3/}. Образующиеся в результате реакции нейтроны имеют относительно небольшую энергию, что весьма удобно для их последующего замедления до резонансных и тепловой энергий.

Размеры бериллиевого блока, необходимого для генерации нейтронов, должны выбираться в соответствии с линейным коэффициентом полного поглощения γ -квантов с энергией 1,692 МэВ, который равен 0,078 см⁻¹ /ослабление в l раз на длине 13 см^{4/}. Оценка выхода нейтронов из бериллиевого блока может быть сделана с помощью выражения:

$$N = J_{\gamma} \frac{\sigma_{\gamma, n}}{\sigma_t} (1 - K),$$

где J_γ - интенсивность γ -источника, $\sigma_{\gamma,n}$ - сечение реакции (γ,n), σ_t - полное сечение поглощения γ -квантов в Ве, К - доля γ -квантов, уходящих из блока.

Отсюда получаем, что максимально возможный выход нейтронов на 1 кюри ^{124}Sb / при $K=0$ / равен $3,6 \cdot 10^7$ нейтр./с.

Как было показано в предыдущих работах [5], наибольшая чувствительность при нейтронно-активационном анализе золота в реальных геологических образцах может быть получена при активации резонансными нейтронами /так как в этом случае значительно улучшается соотношение эффект/фон/, а наиболее подходящим замедлителем нейтронов является графит. Расчет процесса замедления нейтронов в графите показывает, что для замедления нейтронов с первоначальной энергией 24 кэВ до резонансной энергии 5 эВ требуется сравнительно небольшой слой замедлителя толщиной 20-25 см, однако использование в качестве источника нейтронов значительного количества бериллия должно снизить эту величину, так как бериллий сам является хорошим замедлителем. В связи с тем, что точный расчет замедления нейтронов распределенного источника, с учетом его геометрии является довольно сложным, было решено выбор размеров замедлителя произвести на основании результатов эксперимента.

Таким образом, целью экспериментов являлись:

- 1/ выбор оптимальной геометрии системы источник-замедлитель,
- 2/ проверка эффективности использования сурьмяно-бериллиевого источника нейтронов для активационного анализа,
- 3/ сравнение его с другими источниками нейтронов / ^{252}Cf , микротрон/, используемыми для этой цели.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

Для решения указанных выше задач была создана экспериментальная установка, позволяющая проводить облучение образцов с использованием источника ^{124}Sb активностью ~50 кюри. Установка состояла из графитового куба, в центральной части которого располагался бериллий, колодца для хранения источника ^{124}Sb и системы перемещения и фиксации источника. Куб располагался над колодцем глубиной около двух метров, диаметром 100 мм, и имел вертикальный канал сечением 80×80 мм² для перемещения источника. В кубе также имелись четыре горизонтальные полости, в которые помещались образцы для облучения нейтронами /рис.1/.

В качестве радиоактивного источника ^{124}Sb применялись серийные источники типа СУ-7 максимальной активности, выпускаемые В/О "Изотоп". Так как активность таких источников составляла 2,5 кюри, в установке их было использовано 20 шт.

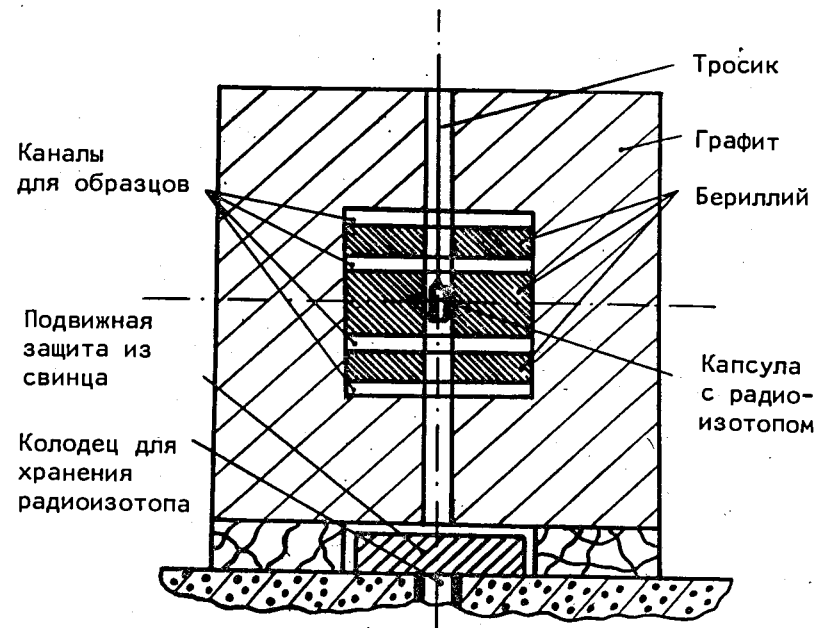
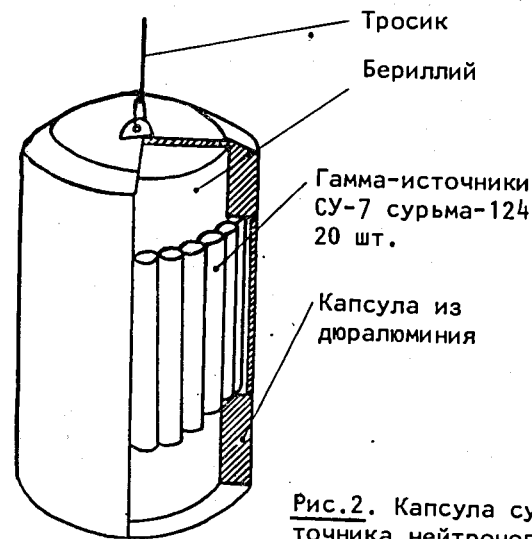


Рис.1. Установка для проведения нейтронно-активационного анализа на основе радиоизотопа ^{124}Sb .



Для наиболее эффективного использования гамма-квантов источники размещались по боковой поверхности бериллиевого цилиндра диаметром 50 мм и высотой 100 мм /рис.2/. Вся сборка помещалась в тонкостенную алюминиевую капсулу, которая с помощью тросика могла опускаться в колодец и подниматься из него в центр бериллиевого блока, находящегося в графитовом кубе.

Рис.2. Капсула сурьмяно-бериллиевого источника нейтронов.

Пространственное распределение плотности потока нейтронов внутри бериллиевого блока и графитового куба измерялось методом активации тонких золотых фольг и с помощью коронного борного счетчика СМ-13. Активность золотых фольг измерялась Ge(Li) детектором по гамма-излучению с энергией $E_\gamma = 412$ кэВ. Для достижения статистической ошибки измерений менее 3% золотые фольги облучались в кубе от 30 до 70 ч. Более оперативно измерения плотности потока нейтронов проводились с помощью борных счетчиков, однако их применение было ограниченным из-за изменения коэффициента усиления счетчиков при их облучении гамма-квантами источника ^{124}Sb . Вследствие этого скорость счета на малых расстояниях от источника оказывалась заниженной, и полученные результаты использовались только для сравнительных измерений. Путем экранирования детекторов нейтронов кадмием определялись как распределение плотности потока тепловых нейтронов, так и распределение плотности потока закадмиевых нейтронов /борным счетчиком/ и нейтронов с энергией 4,9 эВ /золотыми фольгами/.

Для выбора оптимальной геометрии системы источник нейтронов - замедлитель пространственные распределения плотности потока нейтронов измерялись в кубах различных размеров. В первой серии измерений при постоянных размерах бериллиевого блока, равных $28 \times 28 \times 20$ см³, изменялась толщина графитового замедлителя. Измерения были выполнены для графитовых кубов со стороной 50; 70 и 90 см. Основные измерения этой серии выполнялись с помощью борных счетчиков. Результаты приведены на рис. 3.

Для оценки искажения кривых при приближении счетчика к гамма-источнику в кубе размером 90 см распределения были получены также методом активации золотых фольг. Как видно из сравнения кривых на рис. 3, результаты измерений, полученные счетчиком, в точке, наиболее близкой к источнику, занижены в 1,5-2 раза.

Сопоставление результатов, полученных для кубов разных размеров, показывает, что плотность потока резонансных и закадмиевых нейтронов до расстояния ~20 см от центра куба с увеличением толщины графита практически не изменяется, а плотность потока тепловых нейтронов практически одинакова для кубов размером 70 и 90 см.

Во второй серии измерений при постоянных размерах графитового куба /90x90x90 см³/ изменялись размеры бериллиевого блока. Измерения пространственных распределений нейтронов были выполнены для блоков трех размеров: 1/ $18 \times 18 \times 10$ см³, весом 6 кг; 2/ $28 \times 28 \times 20$ см³ весом 39 кг; 3/ $48 \times 48 \times 20$ см³ весом 92 кг. Так как высота бериллиевых блоков была меньше их размеров в горизонтальной плоскости, все измерения распределений также прово-

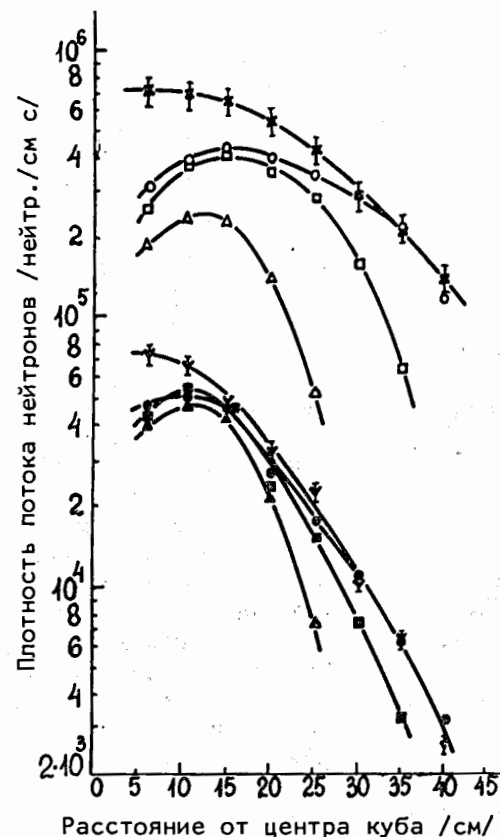


Рис. 3. Пространственное распределение плотности потока нейтронов в графитовых кубах разных размеров. Размеры бериллиевого блока в центре куба $28 \times 28 \times 20$ см³. Измерения выполнены борным счетчиком. Тепловые нейтроны 0 - сторона куба: 90 см; □ - 70 см; Δ - 50 см. Закадмиевые - сторона куба: ● - 90 см, ■ - 70 см; ▲ - 50 см. Измерение методом активации золотых фольг в кубе со стороной 90 см. X - тепловые, V - резонансные.

дились в горизонтальной плоскости куба. Измерения выполнялись как с помощью борных счетчиков, так и путем активации золотых фольг. Результаты измерений, полученные с золотыми фольгами, представлены на рис. 4 и 5.

Полученные экспериментальные данные показывают, что с увеличением размеров бериллиевого блока плотность потока тепловых нейтронов возрастает примерно в 3 раза /при увеличении толщины бериллия в 4 раза/. Плотность потока закадмиевых и резонансных нейтронов растет значительно слабее: по измерениям с борным счетчиком в 1,7 раза, по активации золотых фольг в 1,3 раза, что свидетельствует о смягчении спектра нейтронов по мере увеличения количества бериллия, который является более хорошим замедлителем, чем графит.

С целью сравнения сурьмяно-бериллиевого источника с источником нейтронов спонтанного деления ^{252}Cf для последнего также проводились измерения пространственного распределения плотности потока нейтронов. Для этого в центр куба со стороной 90 см, внутри которого находился бериллиевый

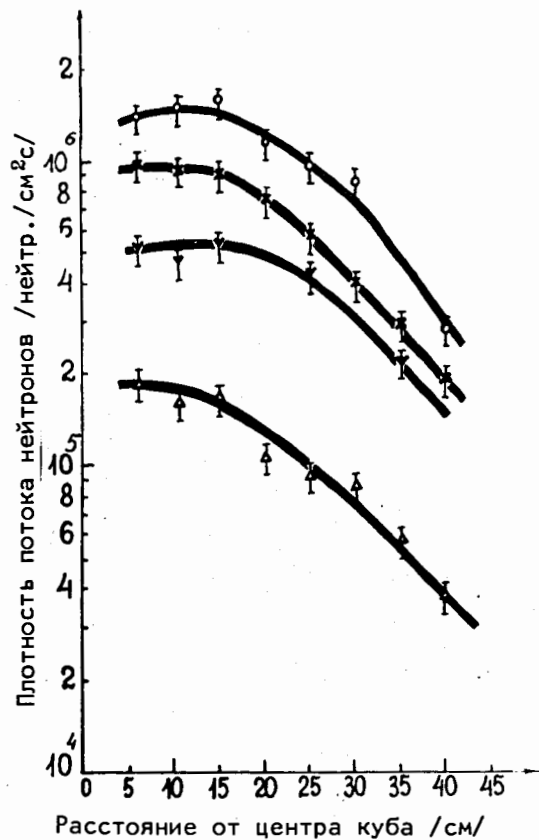


Рис.4. Пространственное распределение плотности потока тепловых нейтронов в графитовом кубе со стороной 90 см. о - ^{124}Sb /50 кюри/ в бериллиевом блоке размерами $48 \times 48 \times 20$ см³, в центре куба; X - ^{124}Sb /50 кюри/ в бериллиевом блоке размерами $28 \times 28 \times 20$ см³ в центре куба; V - ^{124}Sb /50 кюри/ в бериллиевом блоке размерами $18 \times 18 \times 10$ см³ в центре куба; Δ - ^{252}Cf /140 мкг/ в бериллиевом блоке размерами $28 \times 28 \times 20$ см³ в центре куба.

блок размером $28 \times 28 \times 20$ см³, вместо капсулы с сурьмой помещался источник, содержащий 140 мкг ^{252}Cf и имеющий выход нейтронов $3,3 \cdot 10^8$ нейтр./с. Результаты измерений, выполненных методом активации золотых фольг, приведены на рис.4 и 5.

На рис.6 построены распределения потока резонансных нейтронов в сферических слоях вокруг источников (fr^2) как для калифорниевых источников нейтронов, так и для сурьмяно-бериллиевых. В последнем случае данные приведены к активности источника ^{184}Sb , равной 50 кюри. Каждое из этих распределений численно проинтегрировано, для чего была проведена экстраполяция кривых за пределы куба. Сравнение полученных результатов позволило оценить выход нейтронов сурьмяно-бериллиевых источников, который составил $2,5 \pm 0,3 \cdot 10^7$ нейтр./с Ки. Эта величина показывает, что в данной геометрии нами использовалось 70% высокоэнергетического гамма-излучения сурьмы-124. Такой выход фото-нейтронов соответствует выходу калифорниевых источников, содержащего

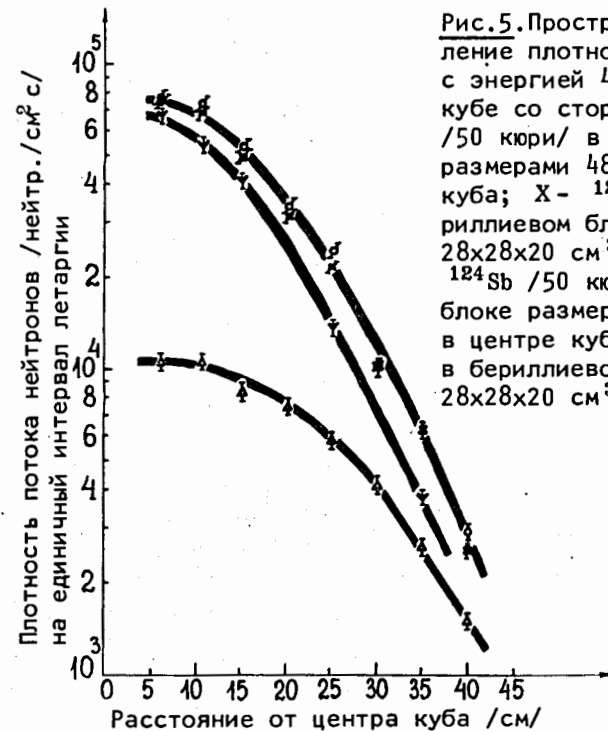
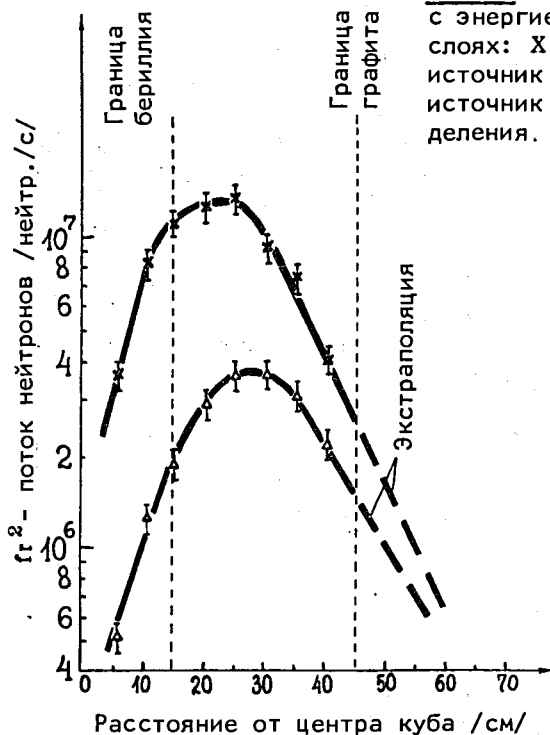


Рис.5. Пространственное распределение плотности потока нейтронов с энергией 4,9 эВ в графитовом кубе со стороной 90 см. о - ^{124}Sb /50 кюри/ в бериллиевом блоке размерами $48 \times 48 \times 20$ см³ в центре куба; X - ^{124}Sb /50 кюри/ в бериллиевом блоке размерами $28 \times 28 \times 20$ см³ в центре куба; V - ^{124}Sb /50 кюри/ в бериллиевом блоке размерами $18 \times 18 \times 10$ см³ в центре куба; Δ - ^{252}Cf /140 мкг/ в бериллиевом блоке размерами $28 \times 28 \times 20$ см³ в центре куба.

11 мкг ^{252}Cf . Однако из-за более высокой энергии нейтроны спонтанного деления распределяются по большему объему замедлителя. Поэтому, как видно из рис.5, для получения такой же плотности потока резонансных нейтронов, как в случае сурьмяно-бериллиевых источников активностью 1 кюри, требуется 20 мкг ^{252}Cf .

Для проверки эффективности использования сурьмяно-бериллиевых источников нейтронов для активационного анализа в кубе со стороной 90 см и бериллиевом блоке размером $28 \times 28 \times 20$ см³ были облучены реальные геологические образцы с содержанием золота 5-50 г/т. Аналогичные образцы тех же самых проб облучались в графитовом кубе микротрона, как это описано в работе [4]. Образцы были упакованы в кассеты диаметром 60 мм и высотой 18 мм, вес образцов составлял ~40 г. Облучения проводились в кадмиевых экранах толщиной 1 мм. Для учета распределения потока резонансных нейтронов использовались мониторы, изготовленные путем нанесения на фильтровальную бумагу эталонного раствора золота /136 мкг/, которые облучались совместно с образцами. Кроме того, одновременно с образцами в таких же кассетах облучались эталоны с известным содержанием золота. Облу-



чение на сурьмяно-бериллиевом источнике продолжалось 66 ч, а на микротроне - 10 ч. Измерение гамма-спектров образцов проводилось спустя сутки и спустя трое суток после облучения на гамма-спектрометре с Ge(Li) - детектором объемом 30 см³, разрешение которого по фотопику ¹³⁷Cs 0,662 МэВ составляло 3,5 кэВ. Образцы, облученные на источнике, измерялись в течение 10 мин, а на микротроне - 3 мин. Содержание золота в образцах определялось относительно методом по площади фотопика ¹⁹⁸Au

с энергией 0,412 МэВ и приведено в таблице. В таблице также приведены отношения площади фотопиков к площади под ними /фон/, которые примерно одинаковы, как в случае облучения образцов на сурьмяно-бериллиевом источнике, так и на микротроне. Небольшая величина этих отношений объясняется большим содержанием в образцах сурьмы и мышьяка, которые сильно мешают определению золота. Характерной особенностью этих отношений является их слабая зависимость от содержания золота в образце, что свидетельствует о наличии связи между содержанием золота и указанных элементов в пробах данного типа *. Учет этого обстоятельства при определении предельной чувствительности метода для образцов данного типа позволяет рассчитывать, что повышение интенсивности облучения образцов приведет к более сильному снижению порога чувствительности, чем по закону $1/\sqrt{N}$.

* Такая связь подтверждается и данными других анализов, выполненных на микротроне.

Таблица

Содержание золота в геологических пробах, полученное нейтронно-активационным методом

Номер образца	Сурьмяно-бериллиевый источник		Микротрон	
	Содержание г/т	Отношение пик/фон	Содержание г/т	Отношение пик/фон
1	46±3,3	0,57	47,8±1,4	0,71
2	42,7±2,5	0,54	40,7±1,2	0,68
3	5,1±1,1	0,31	4,6±0,4	0,30
4	49,5±3,7	0,71	48,7±1,5	0,77
5	5,7±0,9	0,32	4,8±0,4	0,30
6	7,9±1,5	0,32	7,0±0,5	0,35
7	7,6±1,1	0,35	6,9±0,5	0,31

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

На основании проделанной работы можно заключить, что сурьмяно-бериллиевый источник нейтронов является весьма удобным и доступным для целей нейтронно-активационного анализа, имеющим ряд преимуществ по сравнению с другими источниками нейтронов. Оптимальный размер графитового замедлителя - куб со стороной около 70 см, так как дальнейшее увеличение его размеров не приводит к росту плотности потока нейтронов. Сделать однозначный вывод об оптимальных размерах бериллиевого блока более трудно, так как при увеличении размеров блока наряду с ростом плотности потока нейтронов резко возрастает необходимое количество бериллия, стоимость которого довольно высока. Следует также учитывать, что с увеличением количества бериллия возрастает, главным образом, плотность потока тепловых нейтронов, а не резонансных. Поэтому выбор размеров бериллиевого блока зависит и от назначения установки. При использовании бериллиевого блока весом около 30 кг, плотность потока тепловых нейтронов вблизи центра куба составляет $\sim 2 \cdot 10^4$ нейтр./см².с кюри, а резонансных - $1,5 \cdot 10^3$ нейтр./см².с кюри на единичный интервал летаргии.

От источника нейтронов ²⁵²Cf, имеющего спектр нейтронов деления со средней энергией 2,13 МэВ, сурьмяно-бериллиевый источник отличается более низкой энергией нейтронов, вследствие чего для их замедления требуется меньшее количество графита

и реализуется более высокая плотность потока нейтронов при одинаковой интенсивности источников. Отсутствие быстрых нейтронов делает сурьмяно-бериллиевый источник более удобным для решения ряда задач. Кроме того, стоимость ^{124}Sb , необходимой для создания источника с выходом 10^{10} нейтр./с, составляет примерно сотую часть стоимости такого же источника нейтронов на основе ^{252}Cf . Необходимо также отметить более простую радиационную защиту при транспортировке гамма-источников, чем нейтронных источников.

По сравнению с микротроном, одним из простейших ускорителей, генерирующих нейтроны, сурьмяно-бериллиевый источник отличается простотой обслуживания и возможностью без особого труда увеличивать на нем длительность облучения. Это позволяет с помощью источника с выходом 10^{10} нейтр./с при длительности облучения 50-60 ч иметь такую же чувствительность анализов $\sim 10^{-7}$ г/г для золота/, как на микротроне с энергией ускоренных электронов 16 МэВ^{5/7}. Основным недостатком сурьмяно-бериллиевого источника нейтронов является сравнительно небольшой срок службы /несколько месяцев/ и необходимость частой замены гамма-источников ^{124}Sb .

Из всего сказанного можно сделать вывод, что в итоге проделанной работы:

1. Выбрана оптимальная геометрия и размеры графитового замедлителя и бериллиевого блока, позволившие получить выход фотонейтронов сурьмяно-бериллиевого источника, равный $2,5 \cdot 10^7$ нейтр./с на 1 кюри ^{124}Sb /70% от теоретического/.
2. Показана целесообразность использования сурьмяно-бериллиевого источника нейтронов с энергией 24 кэВ для проведения анализа геологических образцов на содержание золота методом активации резонансными нейтронами.
3. Показана возможность достижения порога чувствительности анализа на золото $\sim 10^7$ г/г при использовании источника гамма-излучения ^{124}Sb активностью 500-1000 кюри.

Авторы выражают глубокую признательность академику Г.Н.Флеорову, по инициативе которого была поставлена настоящая работа, Ю.Н.Бурмистенко за ценные советы и дискуссии, В.Я.Выропаеву, К.А.Гаврилову и Л.П.Кулькиной за помощь при проведении экспериментов.

ЛИТЕРАТУРА

1. Tolmie R.W., Thompson C.J. Field Equipment for Neutron Activation Analysis. Nuclear Techniques and Mineral Resources. IAEA, Vienna, 1969, p.489.

2. Выропаев В.Я., Бурмистенко Ю.Н. ОИЯИ, 18-80-584, Дубна, 1980.
3. Gibbons J.H. et al. Phys.Rev., 1959, 114, p.1319.
4. Storm E., Israel H.J. Nuclear Data Tables, 1970, A7, p.565.
5. Базаркина Т.В. и др. ОИЯИ, 18-12629, Дубна, 1979.

Рукопись поступила в издательский отдел
9 сентября 1980 года.