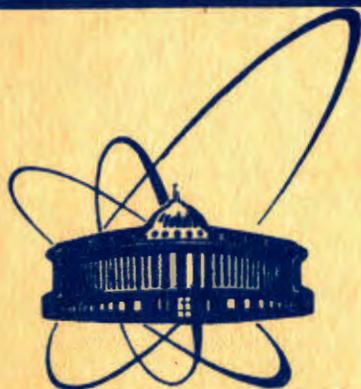


84-8

9/10-84



**СООБЩЕНИЯ
ОБЪЕДИНЕННОГО
ИНСТИТУТА
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ
ДУБНА**

1808/84

18-84-8

А.Г.Белов, Ю.Г.Тетерев

**УСТАНОВКА
ДЛЯ НЕЙТРОННО-АКТИВАЦИОННОГО АНАЛИЗА
НА БАЗЕ ФОТОНЕЙТРОНОВ МИКРОТРОНА
И ГРАФИТОВОГО ЗАМЕДЛИТЕЛЯ**

1984

Для целей нейтронно-активационного анализа /НАА/ используются различные источники нейтронов: реакторы, радиоизотопные источники на основе реакций (α, n) , (γ, n) , спонтанно делящиеся радиоизотопы, например ^{252}Cf , и другие. Кроме того, используются нейтроны, получаемые на ускорителях частиц. В частности, перспективным является применение малогабаритных ускорителей электронов как линейных, так и циклических. Обычная схема получения нейтронов на ускорителях следующая: пучок электронов направляют на тормозную мишень, образующиеся гамма-кванты с непрерывным спектром тормозного излучения попадают на конвертор, генерирующий нейтроны по реакции (γ, n) или (γ, f) .

Описание конверторов нейтронов имеется в большом числе работ, основные результаты которых обобщены в /1/. При НАА используют нейтроны различных энергий, но для активации большинства элементов наиболее эффективным является использование тепловых и резонансных нейтронов. Для их получения источник нейтронов окружают замедлителем, выбор которого определяется поставленной задачей: для получения наибольшей плотности потока тепловых нейтронов, а следовательно, и чувствительности анализа, выгоднее использовать наиболее легкие замедлители /водород, дейтерий/, а для получения наибольшей области активации образцов, т.е. для увеличения производительности анализов, лучше использовать более тяжелые замедлители. Кроме того, при создании установки для нейтронно-активационного анализа важно учитывать стоимость замедлителя. Наиболее подходящим, удовлетворяющим этим требованиям, является графит. В предыдущих работах /2-5/ показаны некоторые возможности использования установки для облучения образцов на базе графитового замедлителя, но мало приведено данных, характеризующих саму установку. Цель настоящей работы - обобщить результаты, полученные при оптимизации установки, и привести достигнутые параметры, характеризующие ее эксплуатационные качества.

Одним из важнейших параметров установки является плотность потока нейтронов, определяемая в первую очередь энергией и интенсивностью нейтронов источника, а также геометрическими размерами и чистотой замедлителя; эта плотность может быть рассчитана аналитически. Размеры графитового куба, предназначенного для облучения образцов резонансными нейтронами, выбираются такими, чтобы плотность потока нейтронов в рабочей области облучения незначительно отличалась от плотности потока в замедлителе с бесконечными размерами. Распределение плотности потока $\phi_{p\infty}$ может быть рассчитано по формуле, полученной при решении уравнения возраста нейтронов и приведенной в /6/:

$$\phi_{p\infty} = Q / \xi \Sigma_s (4\pi r)^{3/2} \cdot e^{-r/4\tau},$$

где Q - число нейтронов в секунду, испущенных источником; r - расстояние от источника; ξ - средне-логарифмическая потеря энергии на одно столкновение; Σ_s - макроскопическое сечение рассеяния; τ - возраст нейтронов при их замедлении от начальной энергии фотонейтронов до энергии резонанса. В качестве исходного для расчетов возраста нейтронов взято табличное эффективное его значение при замедлении нейтронов спектра деления до тепловой энергии $1/\tau_{th} = 350 \text{ см}^2/\text{г}$. Возраст резонансных нейтронов с энергией E рассчитывался по формуле ^{16/}:

$$\tau = \tau_{th} \frac{\lambda_s^2}{3\xi(1-2/3A)} \int_{E_{KT}}^E \frac{dE'}{E'}$$

где λ_s - длина свободного пробега нейтрона по отношению к рассеянию; A - атомный вес ядер замедлителя; $E_{KT} \approx 3,5 \text{ кТ}$ - принятая граничная энергия тепловой области.

За рабочую область примем расстояние r_0 , на котором плотность потока резонансных нейтронов уменьшается не более чем в 2 раза по сравнению с максимальной. В этом случае для нейтронов с энергией 4,9 эВ $r_0 \approx 30 \text{ см}$. Для замедлителя в виде куба со стороной R , в центре которого находится источник быстрых нейтронов, формула имеет вид ^{16/}:

$$\phi_p = \frac{8Q}{\xi \Sigma_s R_1^3} \sum_{l,m,n=1}^{\infty} e^{-\left(\frac{\pi}{R_1}\right)^2 (l^2 + m^2 + n^2) r} \sin \frac{2m\pi}{2} \sin \frac{2n\pi}{2} \sin \frac{l\pi}{2} \sin \frac{l\pi}{2R_1} x,$$

где $R_1 = R + 2d$; d - экстраполированная граница среды, т.е. расстояние от поверхности замедлителя, где экстраполированное значение функции ϕ_p обращается в нуль. Согласно ^{16/}, $d = 1,97 \text{ см}$. Результаты расчетов $\phi_{p\infty}$ и ϕ_p для кубов со стороной 60, 80, 100 и 120 см соответственно приведены на рис.1.

Аналогично были проведены расчеты для плотности потока тепловых нейтронов. Формулы для расчета, аналитический вид которых выведен на основе решения уравнения возраста нейтронов, взяты также из ^{16/}. Расчеты проведены для замедлителя с бесконечными размерами и кубов со сторонами 60; 80; 100 и 120 см соответственно /рис.2/. И использованные формулы выведены с допущениями, что макроскопическое сечение поглощения Σ_a в процессе замедления равно нулю, а эффективная экстраполированная граница среды как для тепловых, так и для нетепловых нейтронов, одна и та же. Истинные рассчитанные значения плотностей потоков нейтронов зависит от возможности применения допущений, используемых при выводе формул, и от некоторой неопределенности используемых реальных параметров источника нейтронов и замедлителя.

/1/

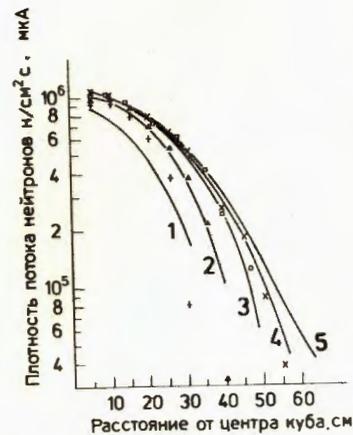
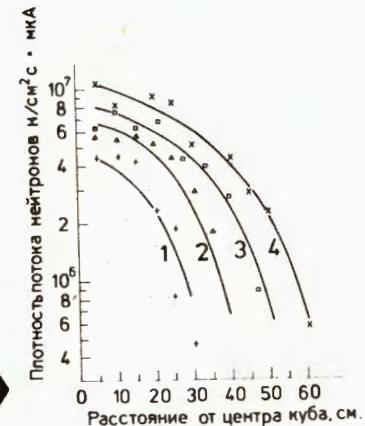


Рис.1. Пространственное распределение плотности потока надтепловых нейтронов при различных размерах замедлителя. + - эксперимент, $R = 60 \text{ см}$, 1 - расчет, Δ - эксперимент, $R = 80 \text{ см}$, 2 - расчет, \square - эксперимент, $R = 100 \text{ см}$, 3 - расчет, \times - эксперимент, $R = 120 \text{ см}$, 4 - расчет, 5 - расчет для замедлителя бесконечных размеров.

Рис.2. Пространственное распределение плотности потока тепловых нейтронов при различных размерах замедлителя: + - эксперимент $R = 60 \text{ см}$, 1 - расчет /значения умножены на 0,94/, Δ - эксперимент, $R = 80 \text{ см}$, 2 - расчет /значения умножены на 0,77/, \square - эксперимент $R = 100 \text{ см}$, 3 - расчет /значения умножены на 0,59/, \times - эксперимент, $R = 120 \text{ см}$, 4 - расчет /значения умножены на 0,48/.



Для проверки достоверности результатов расчетов и определения истинных значений распределений плотностей потока нейтронов в используемом нами /взятом с реактора/ графите, были выполнены экспериментальные исследования с помощью тонких золотых фольг, как в экранах из кадмия, так и без них. Распределения плотностей потоков измерялись в последовательно собираемых графитовых кубах со сторонами 60; 80; 100 и 120 см. В качестве конвертора нейтронов использовался цилиндр из свинца диаметром 50 мм, длиной 50 мм, так как его наведенная активность невелика, а выход нейтронов высок. При этом пучок электронов диаметром 7 мм, ускоренных на микротроне до энергии $E_e = 19 \text{ МэВ}$, направлялся непосредственно на конвертор.

Результаты измерений распределения плотности потока резонансных и тепловых нейтронов в графитовых замедлителях в форме куба приведены на рис.1 и 2 соответственно, в сравнении с результатами расчетов. Чтобы исключить вопрос о правомочности сравнений результатов расчетов, в которых использовалось табличное значение возраста нейтронов, взятого для спектра деления, и результа-

тов экспериментов, где первичным был спектр фотонейтронов, измерено распределение плотности потока при использовании источника нейтронов деления ^{252}Cf . Измерения были проведены в графитовом кубе со стороной 120 см, т.к. возможные отличия могли проявиться в большей степени при максимальных размерах замедлителя. В пределах ошибки эксперимента /15%/ как в форме функции распределения резонансных и тепловых нейтронов, так и в величине отношения плотностей потоков этих нейтронов, отличий от результатов экспериментов, где использовались фотонейтроны свинцового конвертора, не наблюдалось. Не наблюдались они и для уранового конвертора. Одновременно из результатов этого эксперимента установлено, что выход фотонейтронов из уранового конвертора при энергии электронов 20,2 МэВ составляет $4,3 \pm 0,8 \cdot 10^{10}$ н/с мкА, что хорошо согласуется со справочными данными /7/. Приведенная погрешность в основном обусловлена ошибкой, с которой был задан выход нейтронов используемого источника ^{252}Cf .

Из сопоставления экспериментальных и расчетных данных можно сделать следующие выводы:

1. Для резонансных нейтронов оптимальным размером графитового замедлителя /в нашем случае/ является куб со стороной 100 см, дальнейшее увеличение размеров не приводит к росту плотности потока нейтронов в рабочей области.

2. Используемые формулы /1/, /2/ хорошо описывают результаты измерений, кроме результатов для куба со стороной 60 см.

3. Тот факт, что вблизи границ куба экспериментальные значения ниже расчетных, указывает на то, что экстраполированная граница для нейтронов с энергией 4,9 эВ меньше, чем взятое значение $d = 1,97$ см.

4. При увеличении размеров стороны куба от 60 до 120 см происходит постоянное увеличение плотности потока тепловых нейтронов и, как показывают расчеты, при стороне куба 120 см плотность потока достигает примерно половины плотности для замедлителя с бесконечными параметрами. Близкая к максимальной плотность может быть достигнута при размерах стороны графитового куба около двух метров.

5. Форма пространственного распределения тепловых нейтронов удовлетворительно описывается использованными выражениями, но абсолютная величина плотности потока существенно отличается от расчетной. Отличие тем значительней, чем больше размер замедлителя. Этот факт, по-видимому, объясняется тем, что в расчетах не учитывалось поглощения нейтронов во время замедления и наличия примесей в графите, которые увеличили поглощение во время диффузии. На рис.3 приведено сравнение отношения плотностей потоков тепловых нейтронов к резонансным в зависимости от размеров замедлителя для расчетных и экспериментальных данных. Отношение потоков взято на расстоянии 10 см от центра куба.

Приведенные результаты рассчитаны и измерены для сплошных кубов. В действительности в установке имеются каналы для облу-

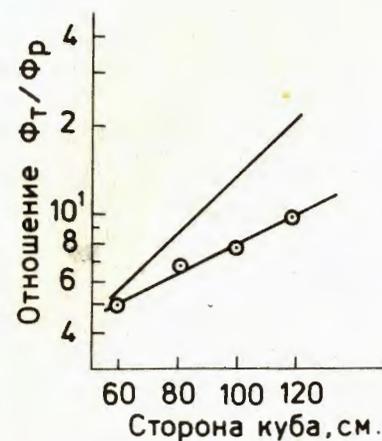


Рис.3. Отношение плотностей потока тепловых нейтронов Φ_T к плотности потока резонансных нейтронов Φ_R в зависимости от размеров стороны куба графитового замедлителя /верхняя линия — расчет, нижняя — эксперимент/.

чения образцов /см. рис.2 работы /5/, расположенные близко к центру куба. За счет этого количество замедлителя вблизи источника нейтронов уменьшается примерно на 30-40%, что, конечно, сказывается на распределении нейтронов, ход которых становится более плавным, а плотность потока

в каналах, как показали измерения, в два раза меньше, чем показано на рис.1 и 2. При этом плотность потока вдали от центра не изменяется.

Плотность потока нейтронов в центральной части куба может быть повышена, если предварительно использовать сразу после конвертора замедлитель из более легкого вещества /назовем его предварительным/. Экспериментально было показано, что плотность потока в рабочей области может быть повышена примерно в 1,5 раза при использовании предварительного замедлителя из оргстекла или полиэтилена толщиной 5-10 мм. Замечено, что увеличение потока нейтронов наблюдается также при использовании водяной рубашки толщиной 4 мм для охлаждения конвертора. Увеличение толщины оргстекла выше 10 мм ведет к снижению плотности потока во всем объеме куба и к более резкому уменьшению потока с увеличением расстояния, что говорит о смягчении спектра нейтронов. Лучшие результаты дает использование предварительного замедлителя из бериллия. Экспериментально выбран оптимальный для облучения образцов размер бериллиевого замедлителя — параллелепипед размерами $12 \times 50 \times 50$ см³, в центре которого располагается конвертор. Помимо замедления, бериллий повышает долю используемого тормозного излучения за счет низкого порога (γ, n) реакции, что увеличивает общий выход нейтронов. Использование предварительного замедлителя из бериллия увеличивает плотность потока в рабочей области примерно в 2 раза. На рис.4 показано влияние различных предварительных замедлителей на плотность потока резонансных нейтронов в графитовом кубе со стороной 120 см.

При загрузке всех каналов образцами для облучения, упакованными в полиэтиленовые коробочки, экранированные листами кадмия, возникает вопрос: как это влияет на распределение нейтронов. Специальные измерения показали, что уменьшение потока составляет не более 10%.

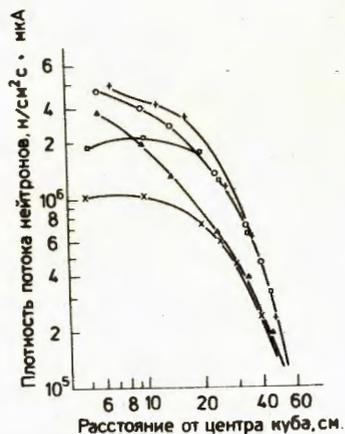


Рис.4. Влияние различных предварительных замедлителей на плотность потока резонансных нейтронов в графитовом кубе со стороной 120 см. x - конвертор из свинца; □ - урановый конвертор без предварительного замедлителя, Δ - предварительный замедлитель из оргстекла толщиной 4 см, o - толщиной 0,7 см, + - бериллиевый замедлитель размерами 50x50x12 см.

Параметрами, характеризующими рассматриваемую установку, по которым ее можно сравнивать, например, с реактором, являются спектр резонансных нейтронов и кадмиевое отношение. Представление о величине кадмиевого отношения

дает рис.3, где показано отношение потоков тепловых нейтронов к резонансным вблизи центра кубов разных размеров. Кадмиевое отношение определяется как отношение активностей фольги без экрана к ее активности при полном экранировании кадмием, т.е. соотношением плотностей потоков тепловых и резонансных нейтронов и соотношением сечений активации в тепловой и резонансной областях. В графитовом кубе со стороной 120 см кадмиевое отношение для золота составляет 1,35. В реакторах это отношение больше 2.

Известно, что спектр нейтронов в резонансной области в непоглощающем замедлителе с равномерно распределенными источниками быстрых нейтронов следует закону I/E . В случае точечного источника быстрых нейтронов спектр резонансных нейтронов следует закону $I/E^{1-\alpha(r)}$, где r - расстояние от источника, вблизи которого $\alpha(r)$ имеет максимальное значение, затем уменьшается до нуля и становится отрицательным по мере увеличения расстояния от источника. Значение коэффициента α можно рассчитать, если построить семейство распределений плотности потока на единицу летаргии для резонансных нейтронов различных энергий по приведенной выше формуле /2/. Тогда

$$\alpha(r) = \ln [\phi(r, E_1) / \phi(r, E_2)] / \ln E_2 / E_1.$$

Рассчитанное таким образом значение α для графитового куба со стороной 120 см составляет 0,087 вблизи источника. Нуль - на расстоянии 40 см, и на границе $\alpha = -0,1$.

Экспериментально спектр нейтронов был измерен в графитовом кубе со стороной 120 см, который имел каналы для загрузки образцов. Спектр нейтронов измерялся с помощью тонких активационных детекторов In, Au, La, Mn и Cu. Метод измерения и табличные данные для восстановления спектра взяты из /8/. Для приготовления

тонких детекторов In, La и Mn соли этих элементов добавлялись в бензойную кислоту C_6H_5COOH , тщательно перемешивались, затем из этой смеси путем прессования изготавливались таблетки. Для детектора из Au была взята фольга толщиной 0,270 мг/см², из Cu - толщиной 12,5 мг/см². Активационные детекторы облучались в экранах из Cd одновременно в пяти точках на расстояниях 7, 17, 25, 35 и 55 см от центра куба. Активность детекторов измерялась с помощью Ge(Li)-детектора. При обработке результатов измерений делалась поправка на самоэкранировку, а при измерении активности Cu, кроме того, использовались конверторы позитронов в гамма-кванты из алюминия толщиной 2 мм. Экспериментальное значение α составляет 0,1+0,01 в первых трех точках, 0,07+0,01 - в точке на расстоянии 35 см и равно нулю в крайней точке. Тот факт, что экспериментальные значения α несколько выше расчетных, вероятно, объясняется захватом нейтронов в процессе замедления.

Чтобы получить наибольшую плотность потоков нейтронов в работающей установке для облучения в графитовом кубе, в качестве конвертора нейтронов используется естественный уран в виде цилиндра, диаметром 35 мм, длиной 30 мм, упакованного в герметичный чехол из алюминия, охлаждаемый водой. Так как выход нейтронов из уранового конвертора выше, чем из свинцового, в 2,5 раза, то и плотность потока замедлившихся нейтронов пропорционально выше. Небольшое различие в спектрах фотонейтронов не влияет на распределение плотности потока. При энергии ускоренных электронов 20,2 МэВ и токе пучка $I_e = 20$ мкА плотность потока тепловых нейтронов составляет $5 \cdot 10^8$ нейтр./см²·с, а резонансных - $5 \cdot 10^7$ нейтр./см² с на единицу летаргии. При этом, как показано в /4,5/, достигается порог обнаружения Au - $2 \cdot 10^{-8}$ г/г, а U - $5 \cdot 10^{-8}$. С использованием уранового конвертора образующаяся при его облучении наведенная активность создает значительную мощность дозы гамма-излучения, что необходимо учитывать во время работы на установке. На рис.5 показано изменение мощности дозы на поверхности установки со стороной 120 см после восьмичасового облучения при токе электронов 12 мкА и энергии 20,5 МэВ.

Указан также предельно допустимый уровень мощности дозы /ПДУ/ при работе 36 ч в неделю. Мощность дозы, обусловленная активностью облученных геологических образцов, - менее 0,1 мкР/с, а на поверхности экранирующего Cd - ≈ 7 мкР/с.

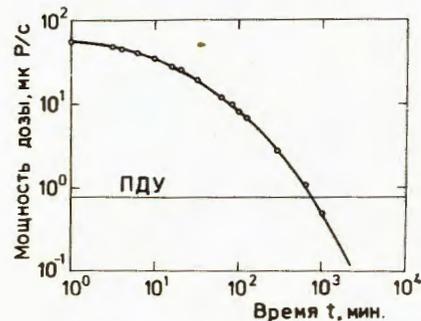


Рис.5. Мощность дозы поверхности установки в зависимости от времени охлаждения.

Авторы выражают признательность академику Г.Н.Флерову, по инициативе которого была поставлена настоящая работа; В.Я.Выропаеву, создавшему первый вариант установки, за ценные советы; Л.П.Кулькиной - за помощь при проведении экспериментов; Ю.С.Замятину - за полезные обсуждения.

ЛИТЕРАТУРА

1. Ковалев В.П. Вторичные излучения ускорителей электронов. Атомиздат, М., 1979.
2. Выропаев В.Я. ОИЯИ, 14-9446, Дубна, 1976.
3. Базаркина Т.В. и др. ОИЯИ, 18-12629, Дубна, 1979.
4. Маслов О.Д. и др. ОИЯИ, 18-12210, Дубна, 1979.
5. Белов А.Г. и др. ОИЯИ, 18-80-841, Дубна, 1980.
6. Бекурц К., Виртц К. Нейтронная физика. Атомиздат, М., 1968.
7. Таблицы физических величин. /Справочник под ред. акад. И.К.Кикоина/, Атомиздат, М., 1976.
8. Крамер-Агеев Е.А., Трошин В.С., Тихонов Е.Г. Активационные методы спектрометрии нейтронов. Атомиздат, М., 1976.

Рукопись поступила в издательский отдел
5 января 1984 года.

Белов А.Г., Тетерев Ю.Г. 18-84-8
Установка для нейтронно-активационного анализа на базе фотонейтронов микротрона и графитового замедлителя

Описана установка для облучения образцов при проведении активационного анализа на тепловых и резонансных нейтронах. Оптимальные размеры установки определены экспериментально и сопоставлены с результатами расчетов. Показано, что предварительное использование в графитовом кубе замедлителя из более легкого элемента позволяет увеличить плотность нейтронов в 2 раза. Достигнутая плотность потока тепловых нейтронов составляет $5 \cdot 10^8$ нейтр./см²·с, резонансных - $5 \cdot 10^7$ нейтр./см²·с. С помощью активационного метода измерен спектр резонансных нейтронов, он может быть описан выражением $I/E^{0.9}$. При организации работы на установке при использовании конвертора из урана необходимо учитывать значительную мощность дозы от наведенной активности, которая достигает 60 мкР/с. Приведен график ее в зависимости от времени.

Работа выполнена в Лаборатории ядерных реакций ОИЯИ.

Сообщение Объединенного института ядерных исследований. Дубна 1984

Перевод О.С.Виноградовой

Belov A.G., Teterov Yu.G. 18-84-8
Setup for Neutron Activation Analysis on the Basis of Microtron Photo-neutrons and Graphite Moderator

A setup for irradiating samples during the activation analysis on thermal and resonance neutrons is described. Its optimum sizes are determined experimentally and compared with the calculation results. It is shown that the preliminary use in a graphite cube of a moderator made of a lighter element permits to increase the neutron flux density by a factor of two. The achieved neutron flux density is $5 \cdot 10^8$ n/cm²·s and resonance neutrons - $5 \cdot 10^7$ n/cm²·s. Using the activation method a spectrum of resonance neutrons is measured that could be described by the $I/E^{0.9}$ expression. When organizing work at the arrangement using a converter made of uranium, a considerable power dose from induced activation should be taken into account. It is as high as 60 mkP/s, and its decrease depending on time is presented.

The investigation has been performed at the Laboratory of Nuclear Reactions, JINR.

Communication of the Joint Institute for Nuclear Research. Dubna 1984