

ОБЪЕДИНЕННЫЙ  
ИНСТИТУТ  
ЯДЕРНЫХ  
ИССЛЕДОВАНИЙ  
ДУБНА

Т 37 -

18-87-870

Ю. Г. Тетерев

ЭЛЕМЕНТНЫЙ АНАЛИЗ И РАДИОГРАФИЯ  
С РЕЗОНАНСНЫМИ ФИЛЬТРАМИ НЕЙТРОНОВ

Направлено в журнал "Атомная энергия"

1987

Резонансными называют фильтры, изготовленные из вещества, в состав которого входит один или несколько нуклидов, имеющих резонансный характер поглощения нейтронов в эпитепловой области. В работах<sup>/1-3/</sup> такие фильтры использовались при нейтронно-активационном анализе /НАА/ для уменьшения в исследуемом образце активности определяемых или мешающих анализу элементов, имеющих большое сечение резонансной активации. И если при анализе образцов небольшой массы /1-2/г с помощью резонансных фильтров активность удавалось снизить в 2,5-4 раза<sup>/1,2/</sup>, то при анализе геологических образцов массой около 50 г было достигнуто снижение активности только в 1,5 раза<sup>/3/</sup>. Как было показано в<sup>/4/</sup>, причиной такого уменьшения эффективности применения фильтров является рассеяние нейтронов.

При пропускании через резонансный фильтр замедленных нейтронов в их спектре будут наблюдаться "провалы", обусловленные поглощением нейтронов в области энергий резонансов экранируемого элемента. Это приводит к тому, что в отсутствие рассеяния активность экранируемого элемента, обусловленная, например, захватом нейтронов в области энергий одного из резонансов  $i$ , уменьшится в  $F_i$  раз. Формула для расчета величины экранирования  $F_i$ , полученная с использованием известных соотношений<sup>/5/</sup> по самоэкранированию фольг при активации эпитепловыми нейтронами, имеет вид

$$F_i = \frac{(1 + 4Nd\sigma_{aoi})^{3/2}}{1 + 2Nd\sigma_{aoi}}, \quad /1/$$

где  $N$  - число атомов рассматриваемого нуклида в  $1 \text{ см}^3$  вещества фильтра,  $d$  - толщина резонансного фильтра,  $\sigma_{aoi}$  - сечение захвата нейтронов с резонансной энергией  $E_{oi}$ .

Формула /1/ применима только для расчета экранирования при использовании не толстых фильтров, когда рассеянием нейтронов в веществе фильтров можно пренебречь. В случае толстых фильтров первичные нейтроны с резонансной энергией будут практически поглощены и резонансная активация будет происходить только за счет поглощения тех нейтронов, которые в результате потерь энергии при рассеянии на веществе фильтров попадут в резонансную область, то есть в случае толстых фильтров

$$F_{iT} = \frac{I_{Oa}^i}{\sigma_p}, \quad /2/$$

где  $I_{Oa}^i$  - резонансный интеграл активации, соответствующий резонансу  $i$ , а  $\sigma_p$  - среднее сечение потенциального рассеяния на всех ядрах вещества фильтра.

На дальнейшем пути нейтронов через вещество исследуемого образца "провалы", образованные в спектре резонансными фильтрами, заполняются за счет более высокоэнергетичных нейтронов, потерявших энергию в результате рассеяния на веществе образца. При этом характер заполнения зависит от эффективной ширины  $\Gamma_{эф.i}$  "провала" и от массового числа  $A$  элементов, на которых происходит рассеяние.

При использовании, например, резонансных фильтров, изготовленных из естественной металлической сурьмы и служащих для снижения ее мешающей активности при НАА золота в геологических образцах, выполняется соотношение

$$\Gamma_{эф.i} \ll (1 - \alpha)E_{Bi}, \quad /3/$$

где  $\alpha = \left(\frac{A-1}{A+1}\right)^2$  - максимальное относительное изменение энергии нейтронов при упругом столкновении с ядром,  $E_{Bi}$  - верхняя энергетическая граница "провала", а  $A$  - массовое число любого из основных пороодообразующих элементов. Такое соотношение имеет место, если учесть, что основными пороодообразующими являются легкие элементы, а резонансные энергии нейтронов для резонансов сурьмы много больше эффективной ширины  $\Gamma_{эф.i}$  при разумных толщинах фильтров /меньше 5 мм/.

Для нахождения численной величины эффективности применения резонансных фильтров с учетом рассеяния нейтронов предлагается следующий формализм. Поток нейтронов, прошедших фильтр, можно представить суммой двух потоков. Спектр  $\Phi(E)$  одного из них тождествен спектру потока, не измененному фильтрами. Спектр другого, отрицательного, - линейчатый. Плотность потока нейтронов в каждой энергетической линии равна доле нейтронов, захваченных фильтрами при данной энергии  $E_{oi}$ , то есть  $(1 - F_i^{-1}) \cdot \Phi(E_{oi})$ .

Активация в образце экранируемого нуклида является результатом действия этих двух потоков. В результате рассеяния при прохождении через образец первый поток нейтронов изменяется незначительно, или, если его спектр имеет вид  $I/E$ , остается неизменным. Для линейчатого спектра, если выполняется соотношение /3/, практически каждый акт рассеяния нейтронов приводит к выходу их из резонансной области энергий. Выражение для расчета результирующей активности  $A_i$  имеет вид

$$A_i = \mu_a \delta \Phi(E) \left[ 1 - (1 - F_i^{-1}) \frac{1 - 2E_3(\mu_s \delta)}{2\mu_s \delta} \right], \quad /4/$$

где  $\mu_a$  - массовый коэффициент захвата нейтронов, в результате которого происходит активация экранируемого нуклида;  $\mu_s$  - массовый коэффициент рассеяния нейтронов веществом образца;  $\delta$  - толщина образца;  $E_3$  - интегральная показательная функция

$$E_n(x) = \int_0^1 t^{n-2} e^{-x/t} dt.$$

Достоверность результатов расчета по формулам /2/ и /4/ была проверена экспериментально с использованием фильтров толщиной 5 мм, изготовленных из естественной металлической сурьмы. Экспериментальное значение общего экранирования  $F_T$  активации изотопа  $^{121}\text{Sb}$ , полученное с тонким монитором ( $4 \text{ мг/см}^2$ ) без образцов, составило  $7,5 \pm 0,5$ . Значение  $F_T$ , оцененное по формуле /2/ для экранирования только трех главных резонансов  $^{121}\text{Sb}$  и с учетом вклада неэкранируемой активации, соответствующей сечению  $1/v$ , равно 7,9, то есть качественное согласие удовлетворительное.

При размещении между фильтрами образцов, приготовленных из одной геологической породы, толщинами соответственно 0,22; 0,43 и 0,86 г/см<sup>2</sup> коэффициенты экранирования активации сурьмы, содержащейся в образцах, составили 4,4; 3,8 и 2,9. Это в пределах 10% ошибки эксперимента совпадает с результатами расчета. Значение величины  $\mu_s$ , измеренное для данной геологической породы в самостоятельном эксперименте, составило  $10,2 \pm 0,02 \text{ см}^2/\text{г}$ .

Интересным для практического применения является случай, когда  $\Gamma_{эф.} > (1 - \alpha_j) \cdot E_{Bj}$  для всех ядер  $j$  исследуемого образца, кроме легчайшего из них. Тогда в энергетической области "провала" может быть найден участок, в который в результате однократного рассеяния могут попасть только нейтроны, рассеянные на легчайших ядрах, так как потери энергии при этом будут наибольшее. При измерении каким-либо детектором, например резонансным, числа нейтронов, попавших в указанный участок, можно найти содержание в исследуемом веществе легчайших ядер, например водорода, углерода или кислорода.

Этот способ определения содержания был реализован при нахождении параметров вероятностного распределения содержания водорода и золотосодержащих геологических образцах одного из регионов. Было проанализировано 100 образцов, высушенных при комнатной температуре. Химический состав исследуемых образцов был существенно различным, а их плотность варьировалась в диапазоне коэффициента два.

Установка для определения содержания водорода представляла собой полый цилиндр с дном и крышкой, изготовленный из металлического индия с толщиной стенок 2,5 мм. Снаружи цилиндр облицован кадмием. В качестве резонансного детектора использовалась фольга из родия толщиной 20 мкм, которая располагалась по внутренней боковой поверхности индиевого цилиндра.

Анализируемый образец упаковывался в тонкостенную алюминиевую капсулу диаметром 34 мм и высотой 40 мм и помещался внутрь установки. В зависимости от плотности материала проб масса образца составляла 35 - 75 г. Установка с исследуемым образцом в течение 2 мин облучалась в графитовом кубе, в котором помещался калифорниевый источник с выходом  $5 \cdot 10^7$  нейтр. $\cdot$ с $^{-1}$ . После облучения из установки извлекался родиевый детектор, и его наведенная активность в течение 100 с измерялась с помощью газоразрядного счетчика  $\beta$ -частиц. По величине активности определялось содержание водорода в анализируемом образце.

Градуировочная характеристика метода определения содержания водорода находилась как путем добавления в образцы, приготовленные из дробленного и прокаленного кварцевого стекла, известного количества воды, так и путем высушивания при 150 $^{\circ}$ С с последующим взвешиванием реальных геологических образцов. Коэффициент чувствительности составил  $3 \cdot 10^4$  импульсов  $\beta$ -счетчика на 1 г содержания водорода. Предел обнаружения водорода, оцененный по критерию Кюри<sup>/6/</sup>, составил 0,015 г.

На рис.1 в виде гистограммы приведены результаты анализа геологических образцов. Предполагалось, что водород входит только в состав воды, находящейся в породе в свободном и связанном виде. По шкале абсцисс отложено содержание воды в %, а по шкале ординат - число образцов n, имеющих содержание воды в данном диапазоне. Ширина диапазона 0,25%. При статистическом анализе полученного распределения найдено, что наиболее вероятное содержание водорода в геологической породе данного региона равно 0,36% со стандартным отклонением 0,16%.

Описываемая методика в отличие от известных<sup>/7,8/</sup> нечувствительна к составу матрицы вещества геологического образца. Резонансная энергия нейтронов для родия равна 1,26 эВ, а индие-

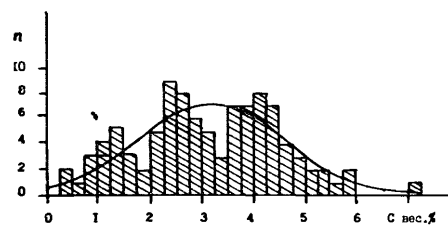


Рис.1. Вероятностное распределение содержания воды в геологических пробах /кривая - нормальное распределение с параметрами:  $m = 3,2\%$ ,  $\sigma = 1,4\%$ .

вый фильтр толщиной 2,5 мм поглощает нейтроны в диапазоне энергий от 1,1 до 2 эВ. Таким образом, при однократном рассеянии даже на самом легком из основных порообразующих элементов - углероде потери энергии нейтронов недостаточны, чтобы попасть в область резонанса родия.

Экспериментальным путем выявлено, что при помещении внутрь установки не содержащих водорода образцов: прокаленного кварцевого стекла, реакторного графита и стали, активность родиевой фольги увеличивалась не более чем на 5% по сравнению с активностью при облучении без образцов.

Требование преимущественно однократного рассеяния приводит к ограничению на массу исследуемого образца. Необходимо, чтобы величина  $\frac{2V}{S} \rho_S \leq 1$ . Здесь V - объем образца, S - площадь его поверхности, а  $\rho$  - плотность.

В отличие от<sup>/8/</sup> при использовании описываемого метода не требуется измельчения пробы и приготовления тонких слоев. Он может быть использован для определения водорода непосредственно в кернах или даже в запаянных сосудах.

Применив не один, а несколько разных резонансных детекторов, имеющих области чувствительности в диапазоне энергий широкого "провала", созданного резонансными фильтрами, можно одновременно определять содержание нескольких элементов.

Рассматривая принцип работы резонансных фильтров, можно обратить внимание на то, что экранированные образцы являются как бы источниками нейтронов для той области энергий, где первичные нейтроны были поглощены фильтрами. Причем интенсивность этих источников зависит от рассеивающих свойств компонент, входящих в состав образца. По аналогии с известным методом автордиографии это свойство было использовано для создания нового метода нейтронной радиографии тонких образцов. Новая методика радиографии состоит в том, что исследуемый объект так же экранируют резонансным фильтром и облучают в изотропном поле эпитепловых нейтронов. При этом вплотную к объекту располагается тонкий резонансный активационный детектор, регистрирующий только нейтроны, рассеянные в объекте и попавшие в интервал энергий, в котором первичные нейтроны были поглощены. Распределение активности по поверхности детектора будет соответствовать распределению в исследуемом объекте ядер, на которых произошло рассеяние. Осуществив контакт резонансного детектора с ядерной эмульсией, можно получить видимое изображение.

В качестве иллюстрации на рис.2 приведено изображение листа крапивы, полученное описанным методом. Для получения изображения облучение проводилось в поле эпитепловых нейтронов графитового куба, где плотность потока составляла  $2 \cdot 10^7$  нейтр.см $^{-2}$ с $^{-1}$ . В качестве источника нейтронов использо-

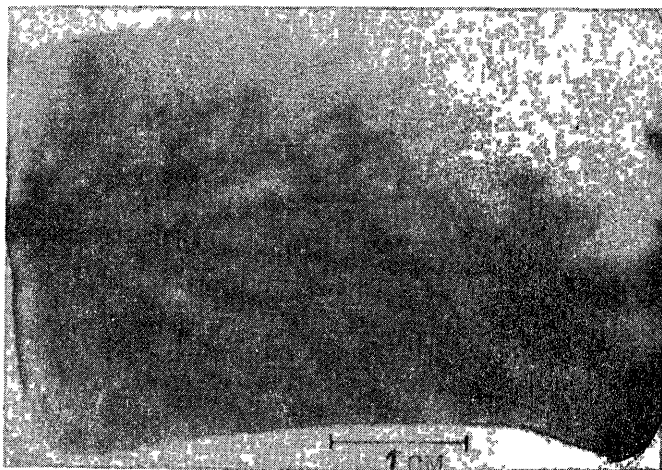


Рис.2. Радиографическое изображение листа крапивы.

вался микротрон МТ-22<sup>/9/</sup>. Резонансный фильтр был изготовлен из металлического индия толщиной 3 мм, резонансным детектором служил также индий толщиной 30 мкм, нанесенный на подложку из титана.

Описываемый метод нейтронной радиографии тонких объектов обладает примерно в 5-10 раз более высокой контрастной чувствительностью по сравнению с традиционными<sup>/10/</sup>. Это объясняется низким фоном в отсутствие рассеивающего объекта и высокой чувствительностью резонансных детекторов. Фон определяется активностью детектора, экранированного толстым резонансным фильтром, то есть зависит от  $F_T$ . Например, при получении изображения рис.2  $F_T$  составляло 25, а наличие в исследуемом объекте водорода с плотностью  $3,6 \cdot 10^{-3} \text{ г} \cdot \text{см}^{-2}$  приводило к двукратному превышению активности индиевого детектора над фоновой. Фон можно снизить еще, если резонансный детектор сделать меньшей толщины.

Описываемый метод позволяет проводить избирательную радиографию распределения определенных элементов, используя, как и выше, то свойство, что величина потерянной нейтроном энергии зависит от массового числа ядра, на котором произошло рассеяние.

Автор выражает признательность академику Г.Н.Флерову за постановку задачи, А.Г.Белову за помощь при проведении экспериментов.

## ЛИТЕРАТУРА

1. Гамбарян Р.Г., Штань А.С. - Атомная энергия, 1968, т.25, с.111.
2. Гамбарян Р.Г. и др. - Вопросы атомной науки и техники. Сер. Радиационная техника, 1980, вып.20, с.84.
3. Белов А.Г. и др. ОИЯИ, 18-80-841, Дубна, 1980.
4. Белов А.Г., Замятин Ю.С., Тетерев Ю.Г. ОИЯИ, 18-83-635, Дубна, 1983.
5. Бекурц К., Виртц К. - Нейтронная физика. М.: Атомиздат, 1968.
6. Currie L.A. - Anal.Chem., 1968, v.40, No.3, p.583.
7. Таточенко Л.К. Радиоактивные изотопы в приборостроении. М.: Атомиздат, 1963.
8. Иващенко Г.А., Старчик Л.П., Тустановский В.Т. - Атомная энергия, 1969, т.27, вып.3, с.233.
9. Белов А.Г. и др. ОИЯИ, Р9-82-301, Дубна, 1982.
10. Тюфяков Н.Д., Штань А.С. Основы нейтронной радиографии. М.: Атомиздат, 1975.

Рукопись поступила в издательский отдел  
14 декабря 1987 года.

НЕТ ЛИ ПРОБЕЛОВ В ВАШЕЙ БИБЛИОТЕКЕ?

Вы можете получить по почте перечисленные ниже книги, если они не были заказаны ранее.

Д7-83-644	Труды Международной школы-семинара по физике тяжелых ионов. Алушта, 1983.	6 р.55 к.
Д2,13-83-689	Труды рабочего совещания по проблемам излучения и детектирования гравитационных волн. Дубна, 1983.	2 р.00 к.
Д13-84-63	Труды XI Международного симпозиума по ядерной электронике. Братислава, Чехословакия, 1983.	4 р.50 к.
Д2-84-366	Труды 7 Международного совещания по проблемам квантовой теории поля. Алушта, 1984.	4 р.30 к.
Д1,2-84-599	Труды VII Международного семинара по проблемам физики высоких энергий. Дубна, 1984.	5 р.50 к.
Д10,11-84-818	Труды V Международного совещания по проблемам математического моделирования, программирования и математическим методам решения физических задач. Дубна, 1983.	3 р.50 к.
Д17-84-850	Труды III Международного симпозиума по избранным проблемам статистической механики. Дубна, 1984./2 тома/	7 р.75 к.
Д11-85-791	Труды Международного совещания по аналитическим вычислениям на ЭВМ и их применению в теоретической физике. Дубна, 1985.	4 р.00 к.
Д13-85-793	Труды XII Международного симпозиума по ядерной электронике. Дубна, 1985.	4 р.80 к.
Д4-85-851	Труды Международной школы по структуре ядра. Алушта, 1985.	3 р.75 к.
Д3,4,17-86-747	Труды V Международной школы по нейтронной физике. Алушта, 1986.	4 р.50 к.
	Труды IX Всесоюзного совещания по ускорителям заряженных частиц. Дубна, 1984./2 тома/	13 р.50 к.
Д1,2-86-668	Труды VIII Международного семинара по проблемам физики высоких энергий. Дубна, 1986./2 тома/	7 р.35 к.
Д9-87-105	Труды X Всесоюзного совещания по ускорителям заряженных частиц. Дубна, 1986./2 тома/	13 р.45 к.
Д7-87-68	Труды Международной школы-семинара по физике тяжелых ионов. Дубна, 1986	7 р.10 к.
Д2-87-123	Труды Совещания "Ренормгруппа-86". Дубна, 1986	4 р.45 к.

Заказы на упомянутые книги могут быть направлены по адресу: 101000 Москва, Главпочтамт, п/я 79. Издательский отдел Объединенного института ядерных исследований.

Тетерев Ю.Г.  
Элементный анализ и радиография с резонансными фильтрами нейтронов

18-87-870

Показаны реальные возможности избирательного снижения активации при экранировании резонансными фильтрами геологических образцов большой массы (около 50 г). Приведено полученное аналитическое выражение для расчета эффективности экранировки, учитывающее рассеяние нейтронов в материале фильтра и в исследуемом образце. Приведены экспериментальные результаты, подтверждающие достоверность расчетов. Сильная зависимость эффективности экранировки от рассеивающих свойств образца использована для разработки новых методов определения содержания легких элементов и проведения нейтронной радиографии. Описана новая методика определения содержания водорода. При использовании источника нейтронов из  $^{252}\text{Cf}$  с выходом  $5 \cdot 10^7$  нейтр.с $^{-1}$  достигнут предел обнаружения 0,015 г водорода в геологическом образце массой 40-70 г. Время анализа 2-3 мин. Результаты анализа не зависят от состава матрицы. Новый метод нейтронной радиографии по сравнению с традиционным имеет в 5-10 раз более высокую контрастную чувствительность.

Работа выполнена в Лаборатории ядерных реакций ОИЯИ.

Препринт Объединенного института ядерных исследований. Дубна 1987

Перевод О.С.Виноградовой

Teterev Yu.G.  
Element Analysis and Radiography with Neutron Resonance Filters

18-87-870

Real possibilities of a selected reducing the activation at screening with resonance filters of geological samples of a large mass (about 50 g) are shown. The analytical expression obtained for calculating the screening efficiency taking into account neutron scattering in filter material and in a sample under study is given. Experimental results confirming the reliability of the calculations are presented. Strong dependence of screening efficiency on sample scattering properties was used for development of new methods: for determining the content of light elements and carrying out the neutron radiography. New methods of determination of hydrogen content are described. The detection limit equal to 0.015 g of hydrogen in geological sample having 40-70 g mass is achieved by using  $^{252}\text{Cf}$  neutron source with  $5 \cdot 10^7$  neutron per sec yield. Time of analysis was 2-3 min. Analysis results do not depend on matrix composition. A new method of neutron radiography has a contrast sensitivity 5-10 times higher as compared to the traditional one.

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

Preprint of the Joint Institute for Nuclear Research. Dubna 1987