

ИНСТИТУТ ЯДЕРНЫХ ИССЛЕДОВАНИЙ
АКАДЕМИИ НАУК УССР

T-37

УДК 539.1.06
На правах рукописи
18-88-111

ТЕТЕРЕВ

Юрий Геннадьевич

**ФОРМИРОВАНИЕ ПОЛЕЙ
ЭПИТЕПЛОВЫХ НЕЙТРОНОВ ПРИМЕНИТЕЛЬНО
К ЗАДАЧАМ АНАЛИЗА
ЭЛЕМЕНТНОГО СОСТАВА ВЕЩЕСТВА**

**Специальность 01.04.16 – физика атомного ядра
и элементарных частиц**

**Автореферат диссертации на соискание ученой степени
кандидата физико-математических наук**

Киев 1988

Работа выполнена в Лаборатории ядерных реакций Объединенного института ядерных исследований, г. Дубна.

Научный руководитель: доктор физико-математических наук,
профессор
ЗАМЯТНИН Юрий Сергеевич

Официальные оппоненты: доктор физико-математических наук,
старший научный сотрудник
ПОПОВ Юрий Павлович

кандидат физико-математических наук,
старший научный сотрудник
ПОЯРКОВ Виктор Алексеевич

Ведущая организация - Институт ядерной физики АН УзССР, Ташкент.

Защита состоится "___" _____ 1988 г.
в 14¹⁵ часов на заседании специализированного совета
Д 016.03.01 при Институте ядерных исследований АН УССР
по адресу: 252028 г. Киев, пр. Науки, 47.

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке ИЯИ АН УССР.

Автореферат разослан "___" _____ 1988 г.

Ученый секретарь специализированного
совета

ЧЕШОКОВА В.Д.

Актуальность тем. Ядерно-физические методы анализа, в частности нейтронно-активационный (НАА), в настоящее время все шире внедряются в практику массового исследования состава руд и продуктов их переработки. Применение более дешевых и доступных, по сравнению с реактором, источников нейтронов на основе радиоактивных изотопов и малогабаритных ускорителей сделало возможным создание методик, пригодных для оперативного контроля, проводимого в аналитических лабораториях полевых партий и экспедиций. Разработанные методики имеют достаточно низкие пределы обнаружения, в основном удовлетворяющие современным требованиям практики.

Однако необходимое, в свете имеющихся тенденций, дальнейшее снижение пределов обнаружения требует поиска новых путей повышения чувствительности методов анализа. Одним из таких путей является использование резонансной энергетической зависимости сечений взаимодействия нейтронов с некоторыми ядрами. В этом случае облучение образцов происходит в предварительно сформированном с помощью резонансных и нерезонансных фильтров поле нейтронов. Снижение пределов обнаружения достигается за счет уменьшения активации в образце мешающих анализу элементов. Этот путь снижения пределов обнаружения широко используется, если масса анализируемого образца не превышает 1-2 г. В то же время положительный эффект был значительно ниже, когда таким путем пытались снизить пределы обнаружения при анализе представительных геологических образцов массой 50-200 г.

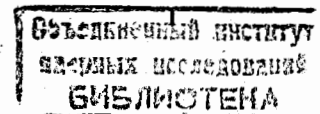
В связи с этим возникла необходимость в изучении особенностей применения нейтронных фильтров с учетом происходящего взаимодействия нейтронов с веществом образцов. На основании изученных особенностей требовалось найти оптимальные условия облучения образцов, при которых вместе со снижением пределов обнаружения достигались бы высокая точность и производительность НАА.

Целью работы является:

- создание способа снижения предела обнаружения некоторых элементов в представительных геологических образцах;
- создание установок для облучения образцов эпитепловыми нейтронами на базе малогабаритных ускорителей и радиоизотопных источников;
- разработка высокопроизводительных методик анализа содержания золота и урана в представительных геологических образцах;
- обеспечение радиационно безопасных условий при проведении аналитических работ.

Для достижения поставленной цели следует:

- I. Изучить особенности применения нейтронных фильтров с учетом взаимодействия нейтронов с веществом образцов.



2. Исследовать нейтронные характеристики геологических пород.

3. Найти оптимальные условия облучения эпитепловыми нейтронами геологических образцов большой массы, при которых вместе со снижением пределов обнаружения достигались бы высокая точность и производительность проведения НАА.

4. Создать установки для облучения образцов эпитепловыми нейтронами и на их основе разработать методики определения содержания золота и урана в геологических образцах большой массы.

5. Провести исследования для обеспечения радиационной безопасности при использовании микротрона и радиоизотопных источников.

Научная новизна и значимость работ:

- изучено влияние рассеяния нейтронов ядрами анализируемого вещества на искажение спектра, сформированного с помощью резонансных и нерезонансных фильтров; предложен способ проведения анализов с использованием фильтров, позволяющий уменьшить искажение спектра и за счет этого снизить пределы обнаружения и повысить точность анализа представительных геологических образцов;

- предложен новый способ определения содержания легких элементов, основанный на изменении при рассеянии нейтронов их спектра, сформированного с помощью нейтронных фильтров;

- предложен метод выбора оптимальных размеров графитовых замедлителей для одновременного облучения эпитепловыми нейтронами более сотни представительных геологических образцов при использовании радиоизотопных источников и ускорителей электронов с энергией 10-30 МэВ;

- с применением эпитепловых нейтронов разработаны методики определения золота и урана в представительных образцах, позволившие снизить пределы обнаружения.

Практическая ценность заключается в

- создании малогабаритных и дешевых облучательных установок;

- разработке конкретных методик определения содержания золота и урана в представительных геологических образцах.

Результаты исследований, представленные в диссертации, могут быть применены при разработке методик НАА на эпитепловых нейтронах для определения содержания в представительных образцах других элементов.

Реализация результатов работ. Созданные на базе микротрона и сурьмяно-бериллиевого источника установки введены в эксплуатацию в ЛЯР ОИЯИ для проведения анализов. Разработанная методика определения содержания золота используется в ЛЯР ОИЯИ, где с ее помощью проанализировано несколько тысяч проб из различных районов СССР и из стран - участниц ОИЯИ. Методика также внедрена во Всесоюзном научно-исследо-

вательском институте химической технологии при разработке новой технологии обогащения руд.

Созданная методика определения содержания урана используется в ЛЯР ОИЯИ для контроля очистки от урана объектов различного химического состава.

Результаты проведенных исследований использованы при создании промышленных аналитических комплексов во Всесоюзном научно-исследовательском институте радиационной техники и в ПГО "Якутгеология".

Апробация работ. Основные результаты исследований, представленные в диссертации, докладывались на научных семинарах научно-экспериментального отдела структуры ядра ЛЯР ОИЯИ и Отдела радиационной безопасности и радиационных исследований ОИЯИ; II Всесоюзном совещании по микротронам, Ужгород, 1981; Всероссийском совещании "Ядерно-физические методы исследования для решения геологических задач в Восточной Сибири", Батагай, 1981; 4 Совещании по использованию новых ядерно-физических методов для решения научно-технических и народнохозяйственных задач, Дубна, 1982; 2-м рабочем совещании "Применение радиоизотопов и радиационной технологии в промышленности", Лейпциг, 1983; Всесоюзном совещании "Ядерно-физические методы элементного анализа", Москва, 1983; Совещании по химии, технологии и анализу золота и серебра, Новосибирск, 1983.

Публикации. Результаты исследований по теме диссертации опубликованы в 12 препринтах и сообщениях ОИЯИ, пяти статьях в журнале "Атомная энергия", в тезисах и докладах совещаний.

На защиту выносятся:

- способ снижения предела обнаружения и повышения точности НАА представительных геологических образцов большой массы при определении содержания элементов, имеющих большое сечение резонансной активации;

- способ применения резонансных фильтров нейтронов для повышения избирательности определения микроэлементов в представительных образцах большой массы;

- способ анализа легких элементов, основанный на рассеянии эпитепловых нейтронов;

- обоснование выбора материала и размеров замедлителей при формировании оптимальных полей эпитепловых нейтронов для проведения массового анализа содержания микроэлементов в представительных геологических пробах с использованием ускорителей электронов и радиоизотопных источников;

- результаты исследований по обеспечению радиационного контроля и радиационной безопасности при работе на микротронах, ускоряющих электроны до энергии 10-30 МэВ.

Объем диссертации. Диссертация состоит из введения, пяти глав, заключения и списка литературы. Содержит 162 страницы машинописного текста, 27 рисунков, 13 таблиц и библиографический список из 114 наименований.

СОДЕРЖАНИЕ ДИССЕРТАЦИИ

Во введении сформулирована основная цель работы, подчеркивается актуальность темы, представлены основные результаты исследований, полученные автором, и дано краткое содержание диссертации по главам.

В первой главе приведен литературный обзор работ по нейтронно-активационному анализу; даны характеристики основных источников нейтронов, которые могут использоваться для проведения НАА. Из неактивных источников рассмотрены более удобные для НАА: источник нейтронов на основе ^{252}Cf и фотонейтронные источники, использующие гамма-излучение изотопов ^{124}Sb , ^{144}Ce - ^{144}Pr , ^{106}Ru - ^{106}Rh , ^{90}Sr - ^{90}Y и тормозное излучение ускорителей электронов.

На примере определения содержания золота в геологических образцах проиллюстрировано, какие основные требования предъявляются геологией к существующим аналитическим методам. Показано, что из всех методов наиболее полно удовлетворяются промышленные требования с помощью НАА.

В связи с тем, что в промышленную переработку вовлекаются все более бедные руды, возникает необходимость в снижении пределов обнаружения. Применительно к НАА подробно рассматривается один из методов снижения пределов обнаружения некоторых элементов, заключающийся в применении для анализа эпитепловых нейтронов.

Для уменьшения активности мешающих анализу элементов, хорошо активирующихся тепловыми нейтронами, используют нерезонансные фильтры (кадмий, бор), а элементов, имеющих большое сечение резонансной активации, по предложению академика Г.Н.Флерова - фильтры, изготовленные из вещества, включающего в себя эти элементы. Происходящее при этом изменение предела обнаружения обычно выражают через коэффициент K , называемый фактором избирательности, который численно равен отношению предела обнаружения, достигаемого при облучении без фильтров, к пределу обнаружения - при облучении с фильтром.

Формула для вычисления фактора избирательности имеет вид:

$$K = \sqrt{\frac{\sum_j N_j}{\sum_j \frac{N_j}{R_{cdj} F_j}} \cdot \frac{1}{R_{cdi}}} \quad (1)$$

где N_j - число импульсов фона, зарегистрированных при измерении на детекторе облученного образца; R_{cdi} и R_{cdj} - кадмиевые отношения для определяемого элемента i и мешающего j соответственно; F_j - коэффициент экранировки мешающего элемента резонансным фильтром.

Применение нейтронных фильтров может дать возможность значительно снизить пределы обнаружения в геологических образцах таких элементов, как Ag, As, Au, In, Ir, Rh, Sb, Th, U, W и других. На практике реальная величина коэффициента избирательности меньше расчетной (по формуле (1)) и может быть меньше единицы, то есть применение фильтра может стать нецелесообразным.

Во второй главе исследуются причины этого явления. Вначале рассматривается наиболее часто встречающийся случай использования только кадмиевого фильтра.

При внесении в поле нейтронов, спектр которых в общем случае имеет вид $1/E^{1-\beta}$, экранированного кадмием геологического образца происходит возмущение этого поля, связанное в основном с рассеянием нейтронов на ядрах вещества образца. Рассеяние вызывает как изменение плотности потока эпитепловых нейтронов, так и изменение их спектра. Причем часть нейтронов в объеме образца будет иметь энергию ниже кадмиевой границы.

Как показали численные расчеты, проведенные по полученным нами формулам, основное возмущение поля нейтронов происходит в результате рассеяния на ядрах водорода, который входит в состав воды или других соединений, присутствующих в геологическом образце.

Формула, полученная для частного случая относительного изменения активности, обусловленного рассеянием нейтронов влагой образца, имеет вид:

$$\frac{\Delta A}{A} = \mu_s \delta \left(\frac{\beta}{1-\beta} + \frac{\sigma_a}{I_a} \frac{1}{1+\mu_a \delta} \right) \quad (2)$$

где ΔA - приращение активности, вследствие рассеяния нейтронов; A - активность, которая образовалась бы на эпитепловых нейтронах в отсутствие рассеяния; μ_s - макроскопический коэффициент рассеяния нейтронов; δ - средняя хорда образца ($\delta = \frac{4V}{S}$, где V - объем, S - площадь поверхности); μ_a - средний макроскопический коэффициент захвата в образце нейтронов, получивших энергию ниже кадмиевой границы; σ_a и I_a - среднее сечение активации рассматриваемого элемента нейтронами, имеющими в образце энергию ниже кадмиевой границы, и резонансный интеграл активации соответственно.

Как видно на примере формулы (2), рассеяние нейтронов в веществе исследуемого образца приводит к неодинаковому увеличению активации различных элементов. Больше увеличение наблюдается для мешающих эле-

ментов, имеющих большую величину отношения σ_a/I_a . Это приводит к уменьшению эффективных значений R_{ca} и, как видно из формулы (1), к уменьшению фактора избирательности.

С другой стороны, рассеяние нейтронов влагой образцов может являться причиной ошибки при проведении анализов, так как количество влаги в исследуемых образцах чаще всего неизвестно, неизвестно поэтому и произошедшее в них изменение активации.

Особенно сильно проявляется рассеяние нейтронов на ядрах вещества образца при использовании резонансных фильтров. Показано, что использование резонансных фильтров толщиной a приводит к тому, что в отсутствие рассеяния обусловленная резонансом активация экранируемого изотопа уменьшается в F раз:

$$F = \frac{(1 + 4Na\sigma_0)^{3/2}}{1 + 2Na\sigma_0}, \quad (3)$$

где N - плотность ядер рассматриваемого изотопа в веществе фильтра; σ_0 - сечение в максимуме резонанса.

Уменьшение активации происходит за счет того, что резонансный фильтр поглощает нейтроны, имеющие энергию в области резонансов. Спектр нейтронов, прошедших фильтр, имеет "провалы" в этих областях энергий. При дальнейшем прохождении нейтронов через облучаемый образец происходит их рассеяние и вследствие этого потеря энергии. Образованные фильтрами в спектре нейтронов "провалы" заполняются.

Рассмотрено два из возможных вариантов:

в первом - ширина "провала" много меньше максимальной потери энергии при однократном рассеянии нейтронов на ядрах вещества образца; во втором - ширина "провала" больше, чем максимальная потеря энергии при однократном рассеянии на ядрах всех элементов, кроме легчайшего из них.

Первый вариант реализуется в большинстве случаев использования резонансных фильтров для уменьшения активации мешающих элементов. В этом случае формула для расчета коэффициента экранировки F_s с учетом рассеяния нейтронов получена в виде:

$$F_s = \left[1 - \left(1 - \frac{1}{F} \right) \frac{1 - 2E_3 \left(\frac{1}{2} \mu_s \delta \right)}{\mu_s \delta} \right]^{-1}, \quad (4)$$

где μ_s - макроскопический коэффициент рассеяния нейтронов веществом образца; E_3 - интегральная показательная функция:

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

Показано, что в отсутствие рассеяния несложно добиться значения F , равного 10-20. Но рассеяние нейтронов уменьшает этот коэффициент, даже для тонкого образца трудно добиться значения F_s , большего 4-5.

Второй вариант предложено использовать для проведения элементного анализа на основе рассеяния нейтронов. Способ анализа основан на том, что в выделенном резонансными фильтрами "провале" имеется область энергий, в которую попадут только нейтроны, рассеянные на легчайших ядрах. По результатам измерения тонким резонансным детектором числа этих нейтронов определяется содержание легчайших ядер, например водорода или углерода. В отличие от известных способов определения содержания по рассеянию нейтронов, предложенный способ является более чувствительным и результаты измерений не зависят от состава матрицы исследуемого вещества.

Из рассмотренных выше особенностей проведения анализов следует, что для достижения точности и заданного снижения предела обнаружения необходимо уменьшать рассеяние нейтронов путем ограничения размера образца δ . Для плоских образцов такое требование ведет к ограничению толщины, что для образцов большой массы ведет к увеличению других размеров. В свою очередь, это накладывает условие на поле нейтронов, в котором происходит облучение образцов. Для равномерной активации, что необходимо для достижения точности анализов, поле эпитепловых нейтронов не должно меняться в пределах размеров облучаемого образца. Такому условию наиболее удовлетворяет поле нейтронов в графитовом замедлителе.

Задача состоит в том, чтобы найти оптимальные размеры такого замедлителя. За оптимальные принимаются минимальные размеры замедлителя, в котором плотность потока нейтронов в месте размещения облучаемых образцов практически не отличается от плотности потока в замедлителе бесконечных размеров.

Показано, что в графитовом замедлителе за рабочую область, которая предназначена для размещения в ней облучаемых образцов, можно принять ту часть замедлителя, которая находится в пределах расстояния от источника нейтронов, меньшего $2L_0$, где L_0 - средняя длина замедления нейтронов источника. Границы рабочей области выбраны из условия достижения низкого предела обнаружения для всех образцов при одновременном их облучении.

В каналах рабочей области может быть размещено 30-40 кг геологической породы. Расчетным путем показано, что размещение в графите такой массы породы, что занимает менее 10% рабочего объема замедлителя, незначительно влияет на пространственное распределение эпитепловых нейтронов.

Исходя из известных законов пространственного распределения эпитепловых нейтронов и представив утечку нейтронов через границы замедлителя в виде отрицательных источников, имеющих спектр I/E , формулу для оценки оптимальных размеров $R_{\text{опт}}$ всего замедлителя можно получить в виде:

$$R_{\text{опт}} = 2[2L_0 + 2L(I/E) - d], \quad (5)$$

где $L(I/E)$ - средняя длина замедления нейтронов, имеющих спектр I/E ; d - длина экстраполяции (для графита $d = 1,97$ см).

Проведенная по формуле (5) оценка показала, что оптимальный размер графитового замедлителя при использовании как источника нейтронов ^{252}Cf , так и фотонейтронов, генерируемых в конверторе из тяжелого металла тормозным излучением электронного ускорителя, равен 103 см, а радиус рабочей области составляет 35 см.

Оценка оптимальных размеров замедлителей при использовании радиоизотопных фотонейтронных источников сделана с учетом пространственного распределения нейтронов, рождающихся в бериллиевом или тяжеловодном конверторе большого объема. Найдено, что для оценки оптимальных размеров замедлителей и рабочей области вместо средней длины замедления нейтронов источника можно принять величину $L_{\phi} = \sqrt{\tau_{\phi} + \frac{1}{3}\lambda_{\gamma}^2}$, где τ_{ϕ} - возраст замедляющихся фотонейтронов, а λ_{γ} - длина ослабления в конверторе гамма-квантов, рождающих нейтроны.

По оценкам найдено, что оптимальный размер замедлителя при использовании сурьмяно-бериллиевого источника около 70 см, а при использовании церий-празеодим-бериллиевого - около 90 см. Оценки размеров сделаны и для случаев использования других источников.

С учетом того, что на точность проведения анализа влияет спектр эпитепловых нейтронов (см. (2)) в замедлителе, сделана его оценка. Показано, что спектр может меняться в зависимости от расстояния до источника и от вида источника. В рабочей области коэффициент β может принимать значения от 0,04 до 0,1.

Третья глава посвящена описанию экспериментов по проверке расчетных оценок и измерению нейтронных характеристик геологических образцов.

Экспериментально найдены оптимальные размеры графитового замедлителя при использовании в качестве источников нейтронов ^{252}Cf и микротрона. Для этого методом активации тонких золотых фольг измерялось пространственное распределение нейтронов в последовательно собираемых кубах со сторонами: 60; 80; 100 и 120 см. Показано, что для проведения анализов на эпитепловых нейтронах оптимальный размер графито-

вого замедлителя, имеющего форму куба, равен 100 см. Дальнейшее увеличение размеров не приводит к росту плотности потока нейтронов в рабочей области, что согласуется с оценками.

В результате измерений установлено, что плотность потока нейтронов в созданных в центральной части куба каналах размером 50x50x2 см становится примерно в два раза меньше, чем она была в тех же точках в сплошных кубах. Плотность потока в каналах повышается в два раза, если использовать комбинированный замедлитель, для чего в центральную часть графитового куба помещают около 50 кг бериллия.

Установлено, что при размещении в каналах комбинированного замедлителя геологических образцов общей массой около 15 кг изменение плотности потока эпитепловых нейтронов в рабочей области не превышает 10%.

С помощью набора активационных детекторов измерен спектр эпитепловых нейтронов в комбинированном замедлителе с каналами. Измеренное значение коэффициента β равно 0,1 практически во всей рабочей области.

В аналогичных, что и с калифорниевым источником, экспериментах найдены оптимальные размеры замедлителей при использовании радиоизотопных фотонейтронных источников: $^{124}\text{Sb-Be}$ и $^{144}\text{Ce-}^{144}\text{Pr-Be}$. Результаты экспериментов хорошо согласуются с расчетными оценками.

Экспериментально установлено, что оптимальный размер конвертора равен длине ослабления гамма-квантов, генерирующих нейтроны. Дальнейшее увеличение размеров не приводит к увеличению плотности потока эпитепловых нейтронов. Измеренные выходы фотонейтронных источников при оптимальных размерах конверторов составляют: для Sb-Be источника $(6,7 \pm 0,7) \cdot 10^{-4}$ нейтр.с $^{-1}$ Бк $^{-1}$, а Ce-Pr-Be источника - $(1,6 \pm 0,2) \cdot 10^{-6}$ нейтр.с $^{-1}$ Бк $^{-1}$.

Эксперименты по исследованию рассеяния нейтронов проводились в поле нейтронов графитового замедлителя оптимальных размеров с использованием радиоизотопных источников. Облучения проводились в сделанной в графите полости, выложенной по стенкам кадмием.

В первой серии экспериментов изучалось влияние рассеяния на изменение спектра эпитепловых нейтронов и изменение, вследствие этого, активации индиевых фольг. Для рассеяния нейтронов использовались полиэтиленовые пленки различной толщины, между которыми помещались детекторы из индиевой фольги, экранированные кадмием.

Результаты экспериментов приведены на рис. 1, где по оси ординат отложено относительное изменение активности индиевой фольги, а по оси абсцисс толщина полиэтилена. Наблюдается согласие с расчетными оценками (первое слагаемое в формуле (2)).

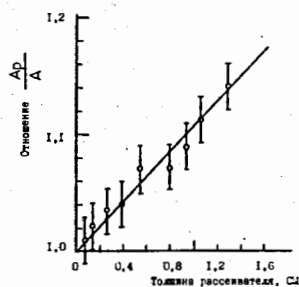


Рис. 1. Изменение активности индиевых детекторов.

Во второй серии экспериментов измерялась величина активации на нейтронах, получивших в результате рассеяния энергию ниже кадмиевой границы. Эксперименты проводились аналогично предыдущим, но с детекторами из V_2O_5 и $KMnO_4$, не экранированными кадмием. Для рассеяния нейтронов использовалась как полиэтиленовая пленка, так и вода, в которой растворялся порошок $KMnO_4$. Сосуды, в которых находилась вода, были разных объемов и формы.

Результаты экспериментов приведены на рис. 2, где по оси ординат отложено относительное увеличение активности детекторов, а по оси абсцисс величина, равная половине средней хорды используемых сосудов. Для полиэтиленовых пленок эта величина равна их толщине. На рис. 2 также приведены данные, найденные в литературе. Результаты экспериментов находятся в согласии с расчетами по формуле (2) и с данными из литературы. Нелинейное увеличение относительного изменения активности с ростом размеров рассеивателя объясняется термализацией нейтронов и связанного с этим увеличением сечения активации.

С использованием резонансных фильтров из металлической сурьмы измерялся коэффициент уменьшения активности сурьмы в геологическом образце в зависимости от рассеивающих свойств и толщины образца. Результаты измерений хорошо описываются формулами (3) и (4) в пределах 10% ошибки.

Цель следующих экспериментов состояла в измерении нейтронных характеристик геологических образцов. Измерения также проводились в поле нейтронов графитового куба.

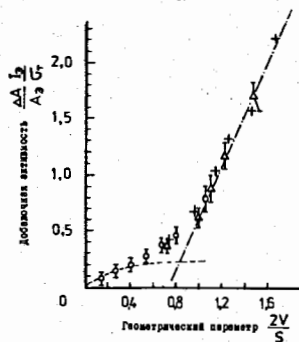


Рис. 2. Изменение активности
○ - детекторов из V_2O_5 ,
△ - детекторов из $KMnO_4$;
+ - данные из литературы.

Для измерения суммарного макроскопического коэффициента рассеяния нейтронов на всех ядрах вещества образца использовались резонансные фильтры из металлической сурьмы. Между фильтрами размещали геологические образцы. Внутри образцов и с их внешней стороны располагали тонкие мониторы, содержащие сурьму. Расчет коэффициента рассеяния проводился с помощью формул, полученных нами для описанной геометрии измерений. Большой разброс в значениях этого коэффициента для различных образцов объясняется в основном различием в содержании влаги.

Проведено измерение наиболее вероятного значения и среднеквадратичного отклонения содержания влаги в геологических образцах одного из регионов. Измерение проводилось с помощью установки, в которой был реализован предложенный выше второй вариант использования резонансных фильтров для определения содержания легких элементов. Толстый резонансный фильтр установки изготовлен из металлического индия, в котором поглощаются нейтроны энергетического диапазона от 1,1 эВ до 2 эВ. Измерение числа нейтронов, рассеянных на водороде воды, производилось с помощью тонкого детектора из родия, имеющего резонанс с энергией 1,26 эВ.

Разработанная методика определения содержания влаги не чувствительна к составу матрицы исследуемого образца. Предел обнаружения влаги составляет 0,1 г при массе исследуемого образца 40-70 г и при использовании для создания поля эпитепловых нейтронов $Sb-Be$ источника с выходом $5 \cdot 10^7$ нейтр. $с^{-1}$.

Для нахождения вероятностного распределения проанализировано 100 образцов. Из результатов статистической обработки получено, что наиболее вероятное содержание влаги составляет 3,2% со средним квадратичным отклонением 1,4%. Непостоянство влаги в составе геологических образцов приводит к тому, что коэффициент рассеяния нейтронов веществом образцов варьируется в диапазоне 0,12±0,26 $см^2 г^{-1}$.

Экспериментально наблюдалось снижение фактора избирательности при увеличении размеров геологического образца, экранированного кадмием. В процессе эксперимента изменяли толщину плоского образца, внутри которого экспонировались мониторы из индия и окиси ванадия. Индий считался определяемым, а ванадий мешающим элементом. Фактор избирательности определяли как корень квадратный из отношения активности индия к активности ванадия. За единицу принимался фактор избирательности при облучении мониторов без образцов. Снижение избирательности наблюдалось и при упаковке образца в полиэтиленовый контейнер. При облучении в общем кадмиевом фильтре трех образцов массой по 150 г (содержание влаги 4%), упакованных в полиэтиленовые контейнеры, фактор избирательности снижался до величины, как при облучении без фильтра.

Результаты расчетов и экспериментов использованы для численной оценки реальных возможностей снижения предела обнаружения золота в стандартном образце РУС-1. Показано, что по сравнению с описанными в литературе методиками, основанными на облучении образцов всем спектром замедленных нейтронов калифорнийского источника, применение резонансных и кадмиевого фильтров даст возможность снизить предел обнаружения в два раза. Для такого снижения предела в известной методике потребовался бы источник с выходом нейтронов в четыре раза большим.

В четвертой главе дано описание установок, созданных для облучения эпитепловыми нейтронами анализируемых образцов.

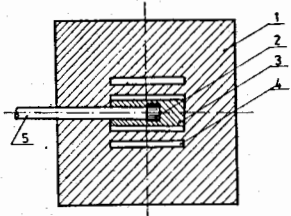


Рис. 3.

Схема облучательной установки на базе микротрона: 1 - графит, 2 - конвертор, 3 - бериллий, 4 - каналы для образцов, 5 - электроновод.

Одна из установок создана на базе микротрона (рис. 3). Замедлитель - комбинированный (бериллий и графит); максимальные размеры - 1200x1200x1000; конвертор нейтронов - уран, облучаемый непосредственно электронами; выход нейтронов в 4π - $8 \cdot 10^{11}$ нейтр. \cdot с $^{-1}$; число каналов - четыре, размером 500x500x22; плотность потока нейтронов в каналах: тепловых - $8 \cdot 10^8$ нейтр. \cdot см $^{-2}$ с $^{-1}$, эпитепловых - $5 \cdot 10^7$ нейтр. \cdot см $^{-2}$ с $^{-1}$.

На базе сурьмяно-бериллиевого источника создано две установки. Одна из них (демонстрационная) собрана совместно с МГРИ и ИТЭФ в горячей камере при ядерном реакторе /6/.

Другая, более доступная и безопасная установка создана в ЛЯР ОИЯИ (рис. 4). Основное ее достоинство заключается в том, что такая установка пригодна для работы в полевых условиях. Доставка источника к установке осуществляется в стандартном контейнере. Перегрузка источника производится непосредственно в установке с помощью разработанного простого устройства.

Установка предназначена для работы с источником ^{124}Sb активностью до $4 \cdot 10^{13}$ Бк, что обеспечивает плотность потока эпитепловых нейтронов $3 \cdot 10^6$ нейтр. \cdot см $^{-2}$ с $^{-1}$. Имеется четыре канала для ручной загрузки образцов и два канала, оборудованные пневмопочтой. Разработанная система защиты и блокировок исключает возможность возникновения радиационной аварии.

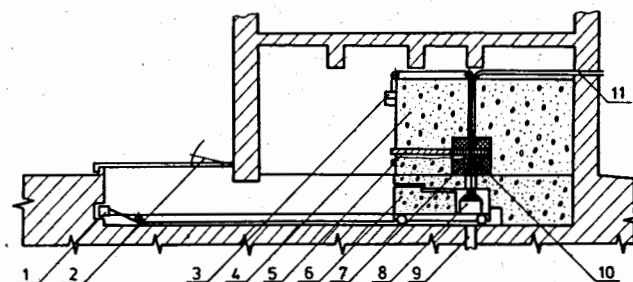


Рис. 4. Облучательная установка на базе сурьмяно-бериллиевого источника. 1 - привод защитно-транспортной тележки, 2 - крышка люка, 3 - привод источника ^{124}Sb , 4 - бетонная защита, 5 - канал для образцов с защитой, 6 - защитно-транспортная тележка, 7 - графит, 8 - контейнер, 9 - защитный колодец, 10 - бериллий, 11 - пневмопочта.

Созданные установки использованы для разработки новых методик определения содержания золота и урана в представительных геологических образцах массой 40-70 г. Основой для разработки новых методик явились результаты проведенных исследований по снижению пределов обнаружения путем облучения образцов эпитепловыми нейтронами.

При использовании для облучения образцов установки, созданной на базе микротрона, достигнут предел обнаружения золота $3 \cdot 10^{-8}$ г/г. Производительность методики - около 70 образцов в смену.

При использовании установки на базе сурьмяно-бериллиевого источника предел обнаружения - $1 \cdot 10^{-7}$ г/г, производительность - 30-40 образцов в сутки.

В ходе совместных работ с ВНИИХТ проведено определение метрологических характеристик методики анализа содержания золота при использовании ее для контроля технологических процессов при переработке руд.

Для определения воспроизводимости результатов использована методика анализа нескольких параллельных проб. Результаты определения воспроизводимости приведены в таблице.

Полная погрешность определялась путем сравнения результатов, полученных с помощью пробирного и разработанного методов при анализе параллельных проб. Проведенный статистический анализ показал, что расхождения сравниваемых результатов незначимы.

Таблица

Сводные данные определения воспроизводимости

Интервал содержаний, г/т	Среднеквадратичное отклонение, %		Запас точности
	допустимое ⁺	фактическое	
0,2-0,59	30	21	1,4
0,6-0,99	30	17	1,7
1,0-1,9	27	13	2,1
2,0-7,9	18	8	2,2
8,0-40,0	9	7,5	1,2

⁺ приняты нормы отклонения /II/.

Методика определения содержания золота использована в ЛЯР ОИЯИ для проведения анализов нескольких тысяч проб из различных районов нашей страны и стран-участниц ОИЯИ. Методика внедрена также во ВНИИХТ для контроля технологии при переработке руд /II/.

Методика определения содержания урана используется в ЛЯР ОИЯИ для анализа объектов с различным химическим составом. При использовании установки на базе микротрона достигнут предел обнаружения урана в геологических образцах $1 \cdot 10^{-7}$ г/г. Методика испытана на воспроизводимость и правильность путем сравнения полученных с ее помощью результатов с результатами анализа, проведенного с помощью имеющейся методики, основанной на регистрации актов деления твердотельными трековыми детекторами.

Созданные установки использовались также для разработки новых методик многоэлементного анализа.

Пятая глава посвящена исследованию радиационной безопасности при использовании различных ядерно-физических установок для проведения активационного анализа. Основной упор сделан на исследовании средств обеспечения радиационной безопасности при использовании микротрона.

Исследования проводились для двух микротронов: на максимальную энергию ускоренных электронов 16 МэВ - МТ-17 и 20,5 МэВ - МТ-22.

Проведены исследования на пригодность широко используемых промышленных дозиметрических приборов для работы в условиях интенсивных полей тормозного излучения с высокой скважностью. Выявлены приборы, использование которых недопустимо. Для оперативных измерений радиационной обстановки предложено использовать гамма-дозиметры на основе сцинтилляторов и дозиметры нейтронов на основе коронных счетчиков типа СММ, помещенных в полиэтиленовый замедлитель.

С помощью исследованных приборов изучен микротрон как источник тормозного и нейтронного рассеянного излучения. Выявлены места основных потерь электронов при их ускорении и транспортировке. Даны рекомендации по проектированию и установке локальных и глобальных защит.

Проведены полномасштабные эксперименты для проверки существующих методов расчета защит ускорителей электронов и сделаны конкретные замечания и поправки к этим методам.

Измерена радиационная обстановка, создаваемая наведенной активностью конструктивных узлов микротрона, охлаждающей воды, воздуха и облученных образцов.

В заключении сформулированы основные результаты диссертационной работы.

1. Экспериментально и расчетным путем показано, что основной причиной, мешающей снижению предела обнаружения ряда элементов в геологических образцах большой массы при проведении анализов с использованием резонансных и нерезонансных фильтров, является рассеяние и термализация нейтронов на ядрах вещества исследуемых образцов.

2. Впервые получены и экспериментально проверены расчетные формулы, позволяющие определить эффективность применения резонансных фильтров для снижения пределов обнаружения анализируемых элементов с учетом рассеяния нейтронов веществом исследуемого образца. Предложен новый вариант использования резонансных фильтров для измерения макроскопических коэффициентов рассеяния нейтронов веществом и новый способ измерения содержания легких элементов.

3. Экспериментально и расчетным путем показано, что одной из возможных причин снижения точности анализов является рассеяние эпитепловых нейтронов на водороде, содержание которого варьируется от образца к образцу. Впервые экспериментально определены параметры (наиболее вероятное значение и дисперсия) вероятностного распределения водорода в представительных золотосодержащих пробах, что позволило оценить дисперсию коэффициентов рассеяния нейтронов веществом пробы и вероятность ошибок, связанных с рассеянием.

4. На основании изученных особенностей определения содержания элементов в образцах большой массы с использованием эпитепловых нейтронов показано, что анализируемые образцы должны облучаться в поле нейтронов с малым градиентом плотности потока. Расчетным путем и экспериментально определены оптимальные размеры графитовых замедлителей для одновременного облучения эпитепловыми нейтронами геологических образцов общей массой 10-15 кг при использовании радиоизотопных источников нейтронов и ускорителей электронов на энергию 10-30 МэВ.

5. На основании полученных в работе результатов расчетов и экспериментов разработаны и созданы оптимальные установки для проведения анализов на эпитепловых нейтронах на базе микротрона и сурьмяно-бериллиевого источника.

6. С использованием созданных установок разработаны методики определения золота и урана в представительных геологических образцах большой массы, позволившие более чем в два раза снизить предел обнаружения этих элементов по сравнению с разработанными ранее методиками.

7. Впервые в достаточно полном объеме исследованы средства обеспечения радиационного контроля и безопасности при использовании микротронов.

Основные результаты диссертации опубликованы в работах:

1. Базаркина Т.В., Белов А.Г., Выропаев В.Я., Кулькина Л.П., Маслов О.Д., Тетерев Ю.Г. Применение микротрона для определения золота в геологических объектах методом активации резонансными нейтронами.- Дубна, 1979, - 10 с. (Препринт/Объед.ин-т ядерн. исслед.: И8-12629).
2. Маслов О.Д., Тетерев Ю.Г., Кулькина Л.П., Белов А.Г., Базаркина Т.В. Применение фотонейтронов микротрона для инструментального активационного определения урана.- Дубна, 1979.- 8 с. (Сообщение/Объед. ин-т ядерн. исслед.: И8-12210).
3. Тетерев Ю.Г., Замятнин Ю.С., Кучер А.М. Источник фотонейтронов на основе ^{124}Sb для нейтронно-активационного анализа. - Дубна, 1980. - II с. (Сообщение/Объед. ин-т ядерн. исслед.: И8-80-599).
4. Бурмистенко Ю.Н., Замятнин Ю.С., Тетерев Ю.Г. Установка для нейтронно-активационного анализа с мощным сурьмяно-бериллиевым источником нейтронов.- Дубна, 1981.- 7 с. (Сообщение/Объед. ин-т ядерн. исслед.: И8-81-171).
5. Белов А.Г., Борча Е., Жучко В.Е., Замятнин Ю.С., Кулькина Л.П., Тетерев Ю.Г., Хо Ден Ги, Эрнандес А.Т. Методика определения содержания золота в геологических образцах с использованием резонансных нейтронов микротрона.- Дубна, 1980.- 9 с. (Сообщение/Объед. ин-т ядерн. исслед.: И8-80-841).
6. Флеров Г.Н., Бурмистенко Ю.Н., Дядин Ю.В., Замятнин Ю.С., Медведев А.А., Сальников А.А., Тетерев Ю.Г. О перспективах развития нейтронно-активационных аналитических установок на базе мощных

сурьмяно-бериллиевых источников. - Атомная энергия, 1982, т. 53, с. 255-260.

7. Бурмистенко Ю.Н., Дядин Ю.В., Замятнин Ю.С., Медведев А.А., Сальников А.А., Тетерев Ю.Г. Нейтронно-активационная установка для анализа порошковых проб с мощным сурьмяно-бериллиевым источником нейтронов.- В кн.: Тезисы докладов Всероссийского совещания "Ядерно-геофизические методы исследования для решения геофизических задач в Восточной Сибири", - Якутск, Изд. ПО "Якутскгеология", 1981, - с. 45-47.
8. Белов А.Г., Тетерев Ю.Г. Установка для нейтронно-активационного анализа на базе фотонейтронов микротрона и графитового замедлителя.- Дубна, 1984.- 8с. (Сообщение/Объед.ин-т ядерн.исслед.: И8-84-8).
9. Белов А.Г., Замятнин Ю.С., Тетерев Ю.Г. Использование резонансных фильтров при активационном анализе на эпитепловых нейтронах.- Дубна, 1983.- 4с. (Препринт/Объед.ин-т ядерн.исслед.: И8-83-635).
10. Тетерев Ю.Г. Учет влияния рассеяния нейтронов при проведении активационного анализа геологических образцов.- Дубна, 1985.- II с. (Препринт/Объед. ин-т ядерн. исслед.: И8-85-443).
11. Флеров Г.Н., Ласкорин Б.И., Бурмистенко Ю.Н., Гастеева Н.Ю., Гущина Р.П., Доброскокин В.В., Жучко В.Е., Замятнин Ю.С., Кварацхели Ю.К., Колеватых В.В., Медведев А.А., Тетерев Ю.Г. Применение микротрона и ^{124}Sb -источника для анализа золотосодержащих продуктов.- В кн.: "Совещание по химии, технологии и анализу золота и серебра". Тезисы докладов, Новосибирск, АН СССР, 1983, с.191.
12. Комочков М.М., Тетерев Ю.Г. Активация воды, охлаждающей узлы синхротрона.- Дубна, 1972.- 17с. (Препринт/Объед.ин-т ядерн.исслед.: Р16-6314). Атомная энергия, 1973, т.34, вып.1, с.17-22.
13. Касьянов В.Ф., Комочков М.М., Тетерев Ю.Г., Мальков В.В. Наведенная радиоактивность строительных и конструкционных материалов в зале синхротрона на 680 МэВ.- Дубна, 1975.- 18с. (Препринт/Объед. ин-т ядерн. исслед.: Р16-8899). Атомная энергия, 1976, т. 40, вып. 6, с. 478.
14. Белов А.Г., Комендантова Г.А., Тетерев Ю.Г., Череватенко А.П. Радиационная обстановка на ускорителе электронов на энергию 16 МэВ - микротроне.- Дубна, 1982.- 14с. (Препринт/Объед.ин-т ядерн. исслед.: И6-82-170). Атомная энергия, 1983, т.54, вып.1, с.38-43.
15. Тетерев Ю.Г. Радиационная обстановка на микротроне МТ-22.- Дубна, 1985.- 10 с. (Препринт/Объед. ин-т ядерн. исслед.: И6-85-23). Атомная энергия, 1987, т.62, вып.5, с. 342-345.

16. Belov A.G., Zhuchko V.E., Zamjatnin Yu.S., Teterov Yu.G. and Rubio D. Development of the nuclear-physical methods of analysis at the Laboratory of Nuclear Reaction of the JINR.- In 2-nd Working Meeting "Radioisotope Application and Radiatic Processing in Industry" (28-th September to 1-st Oktober 1982).- Akademie der Wissenschaften der DDR ZIS Leipzig, ZFI - MITTEILUNGEN, 1983, N 69, p. 161-174.

Рукопись поступила в издательский отдел
15 февраля 1988 года.