

ОБЪЕДИНЕННЫЙ
ИНСТИТУТ
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ
ДУБНА

Т 37

18-88-815

Ю.Г.Тетерев

НЕЙТРОННАЯ АВТОРАДИОГРАФИЯ ВОДОРОДА

Направлено в журнал "Isotopenpraxis"

1988

При прохождении нейтронов через резонансный фильтр в их спектре формируются области "провалов", в которых первичные нейтроны практически полностью поглощены (рис. 2). Если резонансные детекторы, которые находятся внутри объема, ограниченного резонансным фильтром, выбраны таким образом, что энергии их резонансов попадают в области "провалов", то активность этих детекторов будет значительно снижена. Например, в случае, когда резонансный детектор и резонансный фильтр сделаны из одного и того же металла, экранирующий эффект f для активации в резонансном детекторе какого-либо нуклида, имеющего один резонанс, может быть рассчитан по следующей формуле:

$$f = \frac{4}{3 \sqrt{2 \pi N \sigma_0}} (\sqrt{2d+t} - \sqrt{2d}) \cdot \frac{t}{\sqrt{1+2N\sigma_0 t}}, \quad (1)$$

где d — толщина резонансного фильтра, t — толщина детектора, N — число ядер рассматриваемого нуклида в 1 см^3 вещества фильтра и детектора, σ_0 — сечение в максимуме резонанса. Величина экранирующего эффекта определяет активность резонансного детектора в отсутствие исследуемого объекта, то есть фоновый уровень.

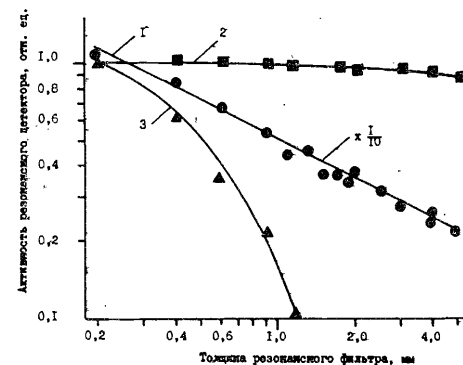
При наличии исследуемого объекта нейтроны рассеиваются на ядрах его вещества и в результате этого теряют энергию в соответствии с кинематическими законами упругого рассеяния. Максимальная величина потерянной нейтроном энергии при рассеянии его на ядре с атомной массой A , равна $\Delta E = (1-\alpha)E$, где $\alpha = \left(\frac{A-1}{A+1}\right)^2$, а E — первоначальная энергия нейтрона. Видно, что потери энергии будут большими при рассеянии на более легких ядрах.

Нейтроны, потерявшие энергию, попадут в область "провалов" и, в частности, могут попасть в резонансную область детектора. Путем выбора вещества резонансных фильтров и детекторов, а также путем выбора их толщин, можно подобрать такие условия, что в резонансную область детектора попадут только нейтроны, потерявшие наибольшую энергию. Потери энергии при рассеянии на более тяжелых ядрах не будут достаточны, чтобы нейтроны смогли попасть в резонансную область.

Ядра водорода становятся как бы изотропными источниками нейтронов, которые регистрируются в виде распределения активности резонансным детектором, расположенным на поверхности объекта. Имеется полная аналогия с обычной автордиографией. Для получения видимой автордиограммы резонансный детектор после облучения помещают в контакт с ядерной фотоэмульсией.

Экспериментальные исследования основных свойств метода НАРГ водорода осуществлялись с использованием резонансного фильтра и резонансного детектора из металлического индия.

Рис. 3. Относительная активность резонансного детектора в зависимости от толщины резонансного фильтра. 1 — активность детектора без объекта (эффективность экранировки), 2 — дополнительное приращение активности за счет рассеяния нейтронов в полиэтилене, 3 — за счет рассеяния в кварцевом стекле.



Целью первой части экспериментов являлся выбор толщины резонансного фильтра, который представлял собой полый цилиндр с дном и крышкой. Снаружи он облицован слоем кадмия толщиной 0,5 мм. Толщину резонансного фильтра изменяли путем последовательного добавления новых слоев индия внутри цилиндра.

Резонансные детекторы представляли собой титановые фольги толщиной 60 мкм, на которые электрохимическим путем нанесено 10 мкм индия. Все детекторы были прокалиброваны путем последовательного облучения их в одном и том же поле нейтронов.

При изменении толщины фильтра внутри цилиндра помещался резонансный детектор, а затем все это устройство облучалось в поле нейтронов, замедленных в графитовом кубе. В качестве источника использовался ^{252}Cf с выходом нейтронов $3 \cdot 10^7$ нейтр. $\cdot \text{с}^{-1}$. При каждой установленной толщине фильтра в цилиндре последовательно облучались: резонансный детектор без объекта, детектор с водородсодержащим объектом и с объектом, не содержащим водорода. Водородсодержащим объектом служил полиэтилен толщиной 150 мкм, а неводородсодержащим — прокаленное кварцевое стекло. После облучения активность резонансного детектора измерялась с помощью газоразрядного счетчика β -частиц.

Результаты эксперимента приведены на рис. 3. Кривая 1 соответствует зависимости эффективности экранирования резонансного детектора, облученного без объекта, от толщины резонансного фильтра. За единицу принята активность детектора, облученного только в кадмии без индиевого фильтра. Кривые 2 и 3 отображают зависимость приращения активности резонансного детектора от толщины фильтра при облучении с водородсодержащим объектом и с кварцевым стеклом соответственно. За единицу принято приращение активности при толщине индиевого фильтра 0,2 мм.

Из результатов эксперимента следует, что увеличение толщины резонансного фильтра ведет к уменьшению активности детектора, облученного без объекта, то есть к снижению фона, и к увеличению ширины "провала". Последнее следует из результатов, полученных при облучении с объектом из кварца (кривая 3). Видно, что с увеличением толщины фильтра все меньшая часть

рассеянных нейтронов достигает энергии резонанса и захватывается детектором. Эта зависимость приращения активности детектора ΔA от толщины фильтра для объекта из кварцевого стекла может быть описана с помощью эмпирической формулы: $\Delta A \sim e^{-23 \cdot 1d}$, где d — толщина фильтра в см. На основе этой зависимости следует, что при толщине фильтра, большей 1,5–2 мм, нейтроны, рассеянные на ядрах тяжелее кислорода, не будут активировать детектор и создавать изображение. Вместе с тем видно, что с увеличением толщины фильтра не уменьшается активация нейтронами, рассеянными на ядрах водорода.

В аналогичных экспериментах, проведенных с резонансными детекторами толщиной 50 и 100 мкм, было показано, что экранирующий эффект при использовании резонансных детекторов и фильтров различной толщины удовлетворительно описывается выражением (1), и что величина отношения активности, образовавшейся при захвате детектором рассеянных на ядрах водорода нейтронов, к активности детектора, облученного без объекта, практически не зависит от толщины детектора. Абсолютная же величина активности детектора при увеличении его толщины растет примерно как \sqrt{t} .

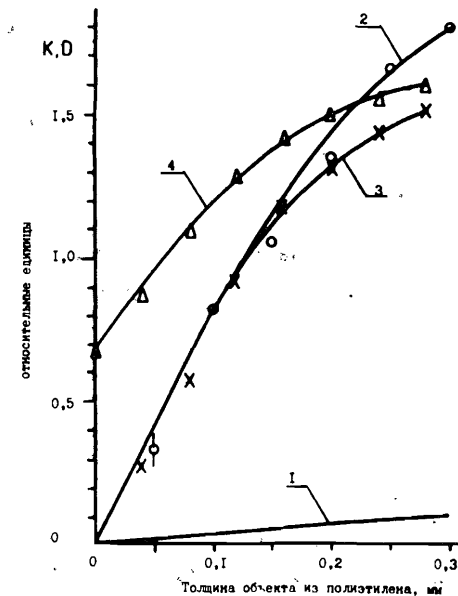
Основная цель, которой добиваются при проведении радиографии, это — найти в количественном выражении распределение каких-либо элементов по поверхности изучаемого объекта. Основными критериями для оценки степени достижения цели являются: контрастность объекта для данного метода исследования; резкость изображения; минимальная величина определения содержания; избирательность. Немаловажным фактором для практического применения метода является и степень сложности его осуществления.

Для выявления возможностей предлагаемого метода было проведено сравнение его с наиболее близкими аналогами: классическая автордиография и нейтронная радиография [2, 3].

Контрастность объекта — это один из основных факторов, определяющих возможность выявления в исследуемом объекте тех или иных различий. Под контрастностью объекта понимают относительную величину отклика детектора на изменение измеряемых параметров. Так как получить изображение распределения легкого изотопа водорода с помощью метода автордиографии невозможно, то сравнение было сделано с методом нейтронной радиографии. В методе нейтронной радиографии [2] контрастность объекта K определяют как величину возмущения плотности потока нейтронов $\Delta \phi$, отнесенную к невозмущенной плотности потока ϕ_0 , ($K = \Delta \phi / \phi_0$). Для объектов небольшой толщины контрастность по отношению к водороду может быть рассчитана с помощью формулы $K = \sigma_t N_H b$, где σ_t — полное сечение взаимодействия тепловых нейтронов с ядрами водорода, N_H — содержание ядер водорода в объекте, b — толщина объекта. Эта рассчитанная для полиэтиленового объекта величина K приведена на рис. 4 (кривая 1).

Контрастность объекта для НАРГ метода была измерена экспериментально и приведена на рис. 4 (кривая 2). Измерения были сделаны с резонансным

Рис. 4. Контрастность объекта из полиэтилена: 1 — рассчитанная для метода нейтронной радиографии; 2 — для метода НАРГ, измеренная с использованием β -счетчика; 3 — полученная путем фотометрических измерений изображения ступенчатого клина; 4 — оптическая плотность почернений изображения ступенчатого клина.



фильтром толщиной 4 мм. Контрастность объекта определялась как отношение приращения активности детектора при размещении на его поверхности полиэтиленовой пленки известной толщины к активности детектора, облученного без объекта. Активность детекторов измерялась с помощью газоразрядного счетчика β -частиц.

Для изучения свойств предлагаемого метода автордиографии было также получено изображение ступенчатого клина из полиэтилена. Изображение получено при облучении в изотропном поле нейтронов в графитовом замедлителе, где плотность потока тепловых нейтронов составляла $\sim 10^7$ нейтронов $\text{см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$. Источником нейтронов служил урановый конвертор, облучаемый электронами, ускоренными на микротроне МТ-25 [4] до энергии 23 МэВ. Толщина резонансного фильтра — 4 мм. Изображения последовательно были получены с резонансными фильтрами толщиной: 20, 30, 40 и 50 мкм соответственно. Толщина ступени клина — 40 мкм. Была использована фотопленка фирмы ORWO типа AF-3.

Зависимость контрастности объекта от толщины слоя полиэтилена, полученная путем фотометрических измерений плотности почернений изображения ступенчатого клина, приведена на рис. 4 (кривая 3).

Из данных, приведенных на рис. 4, видно, что для тонких объектов метод НАРГ обладает примерно в 20 раз большей контрастностью по сравнению с методом нейтронной радиографии. Из результатов экспериментов также следует, что контрастность объекта в методе НАРГ практически не зависит от толщины резонансного детектора. От толщины резонансного фильтра контрастность зависит как $\sim \sqrt{d}$.

Резкость изображения, получаемого с помощью НАРГ, не была измерена для представления количественным параметром. По всей видимости, она хуже,

чем в методах получения изображений с помощью автордиографии и нейтронной радиографии. В предлагаемом методе резкость изображения определяется только геометрическим фактором, и нет никаких других, способствующих улучшению резкости. В методе автордиографии это, например, поглощение испускаемого излучения.

На рис. 4 приведены результаты фотометрических измерений оптической плотности почернений для ступенчатого клина (кривая 4). Видно, что нет смысла исследовать объекты толщиной более 300 мкм. При большей толщине объекта чувствительность становится слишком малой, а лежащие выше слои создают только повышенный фон.

К такому же выводу приводят результаты эксперимента, в котором получали изображения полиэтиленовых дисков диаметром 5 мм, находящихся на разных расстояниях от резонансного детектора. Расстояние задавалось толщиной алюминиевой фольги, помещаемой между объектом и детектором. Изображения дисков, находящихся на расстоянии более 300 – 400 мкм, имеют размытый контур, а на расстоянии более 1 мм изображения вообще получить не удалось. Зависимость чувствительности метода от расстояния до объекта можно использовать для оценки глубинного распределения водорода, если получать изображения с помощью детекторов, расположенных по обе стороны объекта.

Конечно, объекты, содержащие водород только вблизи одной из его поверхностей, могут быть толщиной до нескольких см. Ограничение толщины в этом случае связано с возрастанием роли многократного рассеяния нейтронов. При многократном рассеянии потери энергии даже на тяжелых элементах могут быть достаточны, чтобы нейтроны попали в резонансную область детектора.

Вместе с тем, качество полученных радиограмм различных объектов дает основание надеяться, что метод НАРГ может быть применен для решения большого числа задач.

Минимальная величина определения содержания водорода в объекте с использованием НАРГ может быть оценена при помощи известной формулы $K \propto \Delta D^{1/2}$, связывающей величины изменения плотности почернения ΔD эмульсии и контрастность объекта K : $\Delta D = 0,434 \gamma_D K$, где γ_D – коэффициент контрастности фотоэмульсии, используемой для получения изображения. Приняв, как в $1/2$, величину $\Delta D_{\min} = 0,02$ и $\gamma_D = 3$, получим $K_{\min} = 0,015$. Из данных рис. 4 следует, что такой величине K_{\min} соответствует толщина полиэтилена $t_{\min} = 2$ мкм. Это соответствует минимальному количеству водорода, которое может быть определено с помощью метода НАРГ, равному $3 \cdot 10^{-5}$ г · см⁻², то есть, например, для геологического образца толщиной 300 мкм и плотностью 2 г · см⁻³ минимальная величина концентрации водорода, которая может быть определена, равна $0,5 \cdot 10^{-3}$ г/г.

Избирательность метода НАРГ

В следующем эксперименте была исследована чувствительность метода к присутствию в исследуемом объекте различных элементов. На одном и том же детекторе в виде дисков диаметром 5 мм были расположены объекты: из полиэтилена толщиной 80 мкм, бериллия – 400 мкм, карбида бора, фторопласта CF₄, алюминия, железа, меди, индия, кадмия и свинца толщиной 1 – 2 мм. Естественно, что в виде почернения было получено хорошее изображение диска из полиэтилена; существенно более слабым, но хорошо наблюдаемым было изображение бериллиевого диска. В тех местах, где располагались диски из карбида бора и индия, изображения были получены в виде просветления фона. Изображений других веществ не наблюдалось, то есть все элементы тяжелее бора не мешают при определении водорода в каких-либо объектах. Можно отметить, что метод пригоден для определения распределения водорода даже в объектах, содержащих элементы с большим сечением захвата нейтронов, так как он основан на рассеянии резонансных нейтронов.

Степень сложности

Как можно видеть из сделанного выше описания, степень сложности реализации метода НАРГ не выше, чем метода классической автордиографии, и много проще метода нейтронной радиографии. Здесь не требуется создания коллимированных пучков нейтронов и нет необходимости использовать такие сложные установки, как реактор.

Область применения

Высокая степень контрастности и избирательность метода НАРГ позволили нам использовать его для исследования геологических объектов. Например, по содержанию водорода определялись границы минералов.

Метод можно применять в дефектоскопии металлов, например, для выявления образованных в агрессивных средах на их поверхности гидридов и других соединений водорода.

Возможно применение метода и для выявления скрытых трещин и других дефектов после предварительной обработки объектов водородсодержащей сильно смачивающей жидкостью.

Следует отметить, что метод может быть применен для получения изображений распределения и других легких элементов, но при этом для изготовления резонансных фильтров и детекторов необходимо использовать вещество, в состав которого входят нуклиды, имеющие главные резонансы при более высоких энергиях нейтронов.

ЛИТЕРАТУРА

1. Тетерев Ю.Г. Способ нейтроннографической дефектоскопии. А.с. 1363038 (СССР). – Опубликовано в ОИ, 1987, № 48, с. 138.

2. Тюфяков Н.Д., Штань А.С. *Основы нейтронной радиографии*. М.: Атомиздат, 1975.
3. Tyufakov N.D. *Neutron Radiography. Proceedings of the First World Conference, San Diego, California, USA, December 7-10, 1981, Dordrecht (Netherlands) D.Reidel, 1983, p. 303.*
4. Белов А.Г. и др. *ОИЯИ, Р9-82-301, Дубна, 1982.*

Рукопись поступила в издательский отдел
23 ноября 1988 года.

Тетерев Ю.Г.
Нейтронная автордиография водорода

18-88-815

Физический принцип метода нейтронной автордиографии (НАРГ) состоит в регистрации распределения числа нейтронов, изотропно рассеянных на ядрах исследуемого элемента. Имеется аналогия с традиционной автордиографией (АРГ), где регистрируется собственное изотропное излучение исследуемых ядер. Экспериментальные исследования свойств метода НАРГ водорода проводились с использованием резонансных фильтров и резонансных детекторов, изготовленных из металлического индия. Демонстрация возможностей предлагаемого метода проводилась путем сравнения его с традиционными методами АРГ и нейтронной радиографии (НРГ). Для исследования тонких объектов метод НАРГ обладает примерно в 20 раз большей контрастностью по сравнению с методом НРГ. Достигнутая минимальная величина определения содержания водорода составляет $3 \cdot 10^{-5} \text{ г} \cdot \text{см}^{-2}$. Метод обладает высокой избирательностью для обнаружения водорода даже в объектах, сильно поглощающих тепловые нейтроны. Резкость изображений, получаемых с помощью НАРГ, вполне достаточна для решения большого числа задач. Степень сложности реализации метода не выше, чем метода АРГ, и много проще НРГ. Высокая степень контрастности и избирательности метода НАРГ позволили использовать его для исследования геологических объектов.

Работа выполнена в Лаборатории ядерных реакций ОИЯИ.

Препринт Объединенного института ядерных исследований. Дубна 1988

Перевод автора.

Teterev Yu.G.
Neutron Autoradiography of Hydrogen

18-88-815

The physical principle of the neutron autoradiography method consists in the registration of the distribution number of neutrons, which are scattered isotropically on nuclei of a tested element, whereas in conventional autoradiography the isotropic radiation of nuclei investigated is recorded. The experimental investigation of the main features of the method of neutron autoradiography for hydrogen was done by using a resonance filter and a resonance detector made of metallic indium. To demonstrate the possibilities of the proposed method it was compared with the traditional methods of autoradiography and neutron radiography. The method of neutron autoradiography for thin objects gives an object contrast about 20 times higher than in the case of neutron radiography. The minimum detectable content of hydrogen in an object is $3 \cdot 10^{-5} \text{ g} \cdot \text{cm}^{-2}$. The proposed method has a very high selectivity of hydrogen determination in any object. The sharpness of image has not been studied but it seems that the obtained degree of sharpness is good enough for solving quite a number of problems. The practical use of the method is no more complicated than conventional autoradiography and is substantially easier than that of neutron radiography. The high contrast and selectivity of the method enable one to investigate geological problems.

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

Preprint of the Joint Institute for Nuclear Research. Dubna 1988