

6810

ЭКЗ. ЧИТ. ЗАЛА

ОБЪЕДИНЕННЫЙ
ИНСТИТУТ
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ

Дубна.

P12 - 6810



ЛАБОРАТОРИЯ ЯДЕРНЫХ РЕАКЦИЙ

Нго Куок Быу, В.Я.Выропаев,
Фам Куанг Диен, Е.Л.Журавлева,
Фам Зуи Хиен

РАДИОАКТИВАЦИОННЫЙ АНАЛИЗ
С ИСПОЛЬЗОВАНИЕМ
ТЕПЛОВЫХ И ЭПИТЕПЛОВЫХ НЕЙТРОНОВ
НА РЕАКТОРЕ ИБР-30

1972

P12 - 6810

Нго Куок Быу, В.Я.Выропаев,
Фам Куанг Диен, Е.Л.Журавлева,
Фам Зуи Хиен

РАДИОАКТИВАЦИОННЫЙ АНАЛИЗ
С ИСПОЛЬЗОВАНИЕМ
ТЕПЛОВЫХ И ЭПИТЕПЛОВЫХ НЕЙТРОНОВ
НА РЕАКТОРЕ ИБР-30

Направлено в журнал
"Радиохимия"

ОИЯИ
БИБЛИОТКА

1. Введение

При работе в режиме полной мощности /30 квт/ поток тепловых нейтронов на поверхности водяного замедлителя реактора ИБР-30 толщиной 40 мм воды равен $\sim 7 \cdot 10^{10}$ н/см² сек^{1/1}. С помощью дополнительного замедлителя можно увеличить поток тепловых нейтронов в несколько раз. При этом чувствительность активационного анализа с помощью тепловых нейтронов для некоторых элементов, имеющих большие эффективные сечения активации /Eu, Au, Dy и т.д./, может достигать 10^{-8} - 10^{-9} г при использовании для регистрации γ -лучей Ge(Li)-детектора. Очевидно, что такая чувствительность удовлетворяет требованиям многих задач активационного анализа.

Однако при использовании реактора ИБР-30 для активационного анализа можно отметить еще одну интересную особенность, связанную с высокой долей эпитепловых нейтронов, выходящих из реактора. Благодаря этому, возможно повысить и чувствительность, и избирательность анализа для ряда элементов, имеющих большие резонансные интегралы активации /Ir, Au, U и т.п./, путем облучения анализируемых образцов нейтронами без дополнительного замедлителя.

В настоящей работе сообщены некоторые результаты активационного анализа в каналах тепловых и эпитепловых нейтронов реактора ИБР-30. Измерены физические параметры этих двух каналов для активации, и на основании этих измерений проведено сравнение чувствительности анализа для некоторых элементов. Приведены также γ -спектры идентичных образцов горных пород, облучаемых в обоих каналах активации. При сравнении этих спектров видны преимущества каждого канала с точки зрения чувствительности и избирательности активации определенных элементов.

II. Каналы активации на ИБР-30

Для проведения активационного анализа на ИБР-30 были смонтированы два канала и механизм загрузки - выгрузки образцов, обеспечивающий безопасное выполнение операций без снижения мощности реактора. На рис. 1 представлена схема каналов. Из зала над реактором ИБР-30 идут две герметические трубы из алюминия $\phi = 100 \times 10$ мм, которые оканчиваются примерно на расстоянии 500-600 мм от реактора. Первый канал, предназначенный для активации тепловыми нейтронами, имеет замедлитель из обычной дистиллированной воды. Толщина замедлителя ~110 мм. Второй канал замедлителя не имеет и предназначен для активации эпитепловыми и быстрыми нейтронами. Образцы упаковываются в кассеты, сделанные из органического стекла толщиной 1 мм. При облучении большого количества образцов для ослабления эффекта самопоглощения эти кассеты располагаются на одной плоскости.

III. Методика экспериментов

Концентрация элементов в анализируемых образцах определяется по относительному методу путем одновременного облучения образцов и эталонов. Хорошее разрешение $Ge(Li)$ - детектора позволяет использовать многокомпонентные эталоны. Эталоны изготовлены из титрованных растворов соответствующих солей и растворов с точными навесками. Определенные количества растворов наносятся на диск из фильтровальной бумаги, вложенный в полиэтиленовую кассету.

Соли редкоземельных элементов титруют раствором ЭДТА или ДТПА с 0,1%-ным арсеназо в качестве индикатора. Раствор тория титруется также с помощью ЭДТА с индикатором ксиленовым оранжевым. Раствор золота титруется гидрохиноном с индикатором о-дианиздином.

Из-за того, что поток нейтронов от реактора ИБР невелик, для повышения относительной чувствительности анализируемый образец часто приходится готовить большой навески. При этом возникает необходимость учета различия в эффектах возмущения потока нейтронов, вызванных образцом и эталоном. Нами был исследован этот вопрос путем облучения образцов различных навесок и эмпирически была установлена оптимальная навеска, до которой

можно пренебрегать эффектом возмущения потока нейтронов. В случае необходимости анализа образца большой навески мы используем метод внутреннего эталона.

Гамма-спектры радиоактивных образцов и эталонов снимаются с помощью $Ge(Li)$ -детектора объемом 30 см^3 и амплитудного анализатора АИ-1024. Эффективность детектора по фотопику равна $1,5 \cdot 10^{-2}$ при $E_\gamma = 100 \text{ кэВ}$ и падает до $1,5 \cdot 10^{-3}$ при $E_\gamma = 1000 \text{ кэВ}$. Среднее разрешение γ -спектрометра - около 5 кэВ.

IV. Физические параметры каналов для активационного анализа

Из-за неупругих рассеяний нейтронов на ядрах горючего, конструкционных материалов и присутствия окружающего активную зону замедлителя из 40 мм воды спектр нейтронов, выходящих из реактора, заметно отличается от спектра нейтронов деления. В табл. 1 приведены данные работы /1/ по энергетическому распределению нейтронов, полученные с помощью пороговых детекторов /табл. 1/. Согласно результатам измерения детального спектра эпитепловых нейтронов работы /1/ в области от 1 эВ до 10 кэВ поток нейтронов $\Phi(E)$ падает с энергией по закону, близкому к $\frac{1}{E}$, а именно:

$$\Phi(E) \sim \frac{1}{E^{0,9}} \quad /1/$$

При $E > 10 \text{ кэВ}$, как нетрудно видеть из табл. 1, такая простая энергетическая зависимость уже не соблюдается.

Для активационного анализа является важным определение кадмиевого отношения R_{Cd} . Для этого применяется стандартный метод сравнения активности золотых фольг /0,03 мг/см² Au/, облучаемых открыто и с кадмиевым покрытием /0,5 мм/ в поле нейтронов, при этом:

$$R_{Cd} = \frac{C_{th} + C_{epi}}{C_{epi}} \quad /2/$$

где C_{th} и C_{epi} - активности, вызванные тепловыми и эпитепловыми нейтронами. Результаты измерений приведены в табл. 2.

Таблица 1

Энергетический интервал /эв/	<0,4	0,4-400	400-0,56.10 ⁶	0,56.10 ⁶ - -1,4.10 ⁶	1,4.10 ⁶ - 2,8.10 ⁶	>2,8.10 ⁶
	II	I4	29	29	II	6

Таблица 2

	R_{cd}	Φ_{th} / Φ_{epi}
Канал I	6,2	93
Канал II	1,4	6,0

Из полученных значений для R_{cd} можно вычислить отношение потока тепловых и эпитепловых нейтронов для каждого канала. В случае использования тонких золотых фольг можно применить формулу /2/

$$R_{cd} = \frac{\Phi_{th}}{\Phi_{epi}} \cdot \frac{\frac{\sqrt{\pi}}{2} a(T) \sigma_{act}}{I_{act}} + \epsilon_{cd} + 1, \quad /3/$$

где Φ_{th} - поток тепловых нейтронов, Φ_{epi} - поток эпитепловых нейтронов в единице летаргии, σ_{act} - сечение активации при энергии нейтронов, соответствующей скорости 2200 м/сек, I_{act} - резонансный интеграл активации /для золота $\sigma_{act}=98,5 \text{ б}$, $I_{act}=1585 \text{ б}/$.

$a(T)$ - некоторый зависящий от температуры фактор, который в нашем эксперименте близок к единице, ϵ_{cd} - некоторая несущественная поправка, учитывающая толщину кадмиевого экрана, $\epsilon_{cd} = 0,07$. Вычисленные значения для $\frac{\Phi_{th}}{\Phi_{epi}}$ представлены в табл. 2. Полученная для $(\frac{\Phi_{th}}{\Phi_{epi}})^{II}$ величина хорошо согласуется со значением, вычисленным на основе данных табл. 1, $(\frac{\Phi_{th}}{\Phi_{epi}})^{II} = 5,5$, если

учитывается некоторое повышение доли тепловых нейтронов из-за присутствия рядом с каналом II замедлителя канала I.

Нами было исследовано также пространственное распределение потока нейтронов, падающих на плоскость, на которой располагаются образцы. С точностью $\pm 5\%$ распределение потока на этой плоскости можно считать равномерным.

V. Чувствительность активационного анализа

Ниже проведено сравнение чувствительности активационного анализа на двух каналах, I и II. В канале I образцы облучаются и тепловыми, и эпитепловыми нейтронами, а в канале II образцы покрыты кадмиевой фольгой /0,5 мм Cd/, так что активность образцов вызвана только эпитепловыми и быстрыми нейтронами, непосредственно выходящими из реактора. Пусть режимы облучения и измерения для обоих каналов одинаковы, тогда отношение активностей данного изотопа может быть вычислено по формуле

$$\frac{C^I}{C^{II}} = \frac{\Phi_{th}^I \sigma_{act} + \int_{E_{Cd}}^{\infty} \sigma(E) f^I(E) dE}{\int_{E_{Cd}}^{\infty} \sigma(E) f^{II}(E) dE}, \quad /4/$$

где $f^{I,II}(E)$ - нормированные спектры надкадмиевых нейтронов для каналов I и II, $\sigma(E)$ - сечение активации в зависимости от энергии нейтрона E , E_{Cd} - некоторая "граничная" энергия, соответствующая поглощению нейтронов в кадмиевой фольге. Если предполагается, что спектр эпитепловых нейтронов в обоих каналах описывается

законом $\Phi(E) = \frac{\Phi_{epI}}{E}$, и вкладом в активацию от быстрых нейтронов / $E > 10$ кэВ/ пренебрегается, то формула /4/ может быть переписана в виде

$$\frac{C^I}{C^{II}} = \frac{\Phi_{th}^I \sigma_{act} + \Phi_{epI}^I I_{act}}{\Phi_{epI}^{II} I_{act}} = \frac{\Phi_{th}^I}{\Phi_{epI}^{II}} \left[\frac{\sigma_{act}}{I_{act}} + \frac{1}{93} \right]. \quad /5/$$

При выводе формул /4/ и /5/ не учитываются также некоторые поправки, связанные с температурой максвелловского спектра нейтронов, поглощением и рассеянием нейтронов в облучаемых фольгах. Данные для σ_{act} и I_{act} могут быть взяты из /2/, а величина

$\Phi_{th}^I / \Phi_{epI}^{II}$ была определена экспериментально. Для этого опять

сравниваем активности золотых фольг, облучаемых в двух каналах. Мы имеем для золота:

$$\frac{C^I}{C^{II}} = 0,88,$$

отсюда

$$\frac{\Phi_{th}^I}{\Phi_{epI}^{II}} = 12. \quad /6/$$

Экспериментальные данные для $\frac{C^I}{C^{II}}$ приведены в табл. 3. Для сравнения там же приведены соответствующие значения, вычисленные по формуле /5/ с учетом /6/. Имеется хорошее согласие, если учитываются экспериментальные ошибки и ошибки литературных данных для σ_{act} и I_{act} . Таким образом, можно использовать простую приближенную формулу /4/ для оценки чувствительности анализа различных элементов на двух каналах активации. Согласно /4/ чувствительность анализа в канале II выше, чем в канале I ($C^{II} > C^I$) при $I_{act} > 12\sigma_{act}$. Это неравенство удовлетворяется для элементов Au, Ag, In, Sb, Cs, Sm, Ta, U, ...

В табл. 3 указаны также экспериментальные данные по чувствительности анализа во II-ом канале активации. Эти данные соответствуют случаю двухдневного облучения. Невысокая чувствительность анализа связана с малым потоком нейтронов и низкой эффективностью детектора.

Интересно сравнить участки γ -спектров / $E_\gamma < 520$ кэв/ идентичных образцов, облученных в двух каналах активации /рис. 2 и 3/. Облучались образцы горной породы, содержащей 1% меди и 0,5% редкоземельных элементов. Хорошее разрешение детектора позволяет количественно определить концентрации многих элементов по площадям фотопиков без химического выделения. На рис. 3 /облучение тепловыми нейтронами/ отчетливо видны γ -линии ^{239}Np , получающегося из ^{238}U по реакции (n, γ) с последующим β -распадом, в то время как эти линии отсутствуют в спектре рис. 2 /облучение тепловыми нейтронами/. Это согласуется с данными табл. 3. Хорошо выражена также линия 412 кэв ^{198}Au , которой нет в спектре рис. 2, хотя чувствительности определения золота в обоих каналах почти одинаковы. Это легко понять, если обратить внимание на высокий уровень счета γ -лучей в области 412 кэв спектра рис. 2. Этот высокий фон обусловлен сильной активацией тепловыми нейтронами других элементов в образце.

Таблица 3

Изотопы	$T_{1/2}$	I_{act} в барнах	σ_{act} в барнах	R (кэв)	C^1/C^2 (расчетн.) (эксп.)	Чувствит. (гр), (ЮММ/МИН)
^{198}Au	2,69д	1550±40	98,6±0,3	412	0,88	$1 \cdot 10^{-8}$
^{116m}In	54д	2630±133	160±2	1293	0,86	$5 \cdot 10^{-8}$
^{134}Cs	3,9ч	400±25	0,017	127	0,12	$4 \cdot 10^{-8}$
^{153}Sm	47ч	2740±150	140±40	103	0,73	$2 \cdot 10^{-8}$
^{182}Tl	111д	590	19±7	67	0,50	$2 \cdot 10^{-6}$
^{233}Pa (из ^{232}Th)	27,4д	85	7,5	312	1,1	$6 \cdot 10^{-6}$
^{239}Pu (из ^{238}U)	2,3д	281	2,7	277	0,2	$5 \cdot 10^{-7}$
^{187}W	24ч	420±100	34±7	480	1,16	$2 \cdot 10^{-7}$
^{177}Lu	6,8д	4000	887	208	4	$6 \cdot 10^{-8} x$
^{152m}Eu	9,2ч		1400±300	344		$1 \cdot 10^{-9} x$
^{140}La	40ч	11	8,2±0,8	487	9	$5 \cdot 10^{-7} x$

x) Для канала с замедлителем.

В заключение авторы выражают благодарность Г.Н.Флерову за постановку задачи и постоянный интерес к работе, а также дирекции ЛНФ, В.Т.Руденко и коллективу работников ИБРа-ЗО за постоянную помощь и консультации.

Литература

1. В.В.Голиков, Ж.А.Козлов, Л.К.Кулькин, Л.Б.Пикельнер, В.Т.Руденко, Э.И.Шарапов. Сообщение ОИЯИ, 3-5736, Дубна, 1971.
2. К.Бекури, К.Виртц. Нейтронная физика, Атомиздат, 1968.

Рукопись поступила в издательский отдел
21 ноября 1972 года.

Зал ЛУЗ-40^а

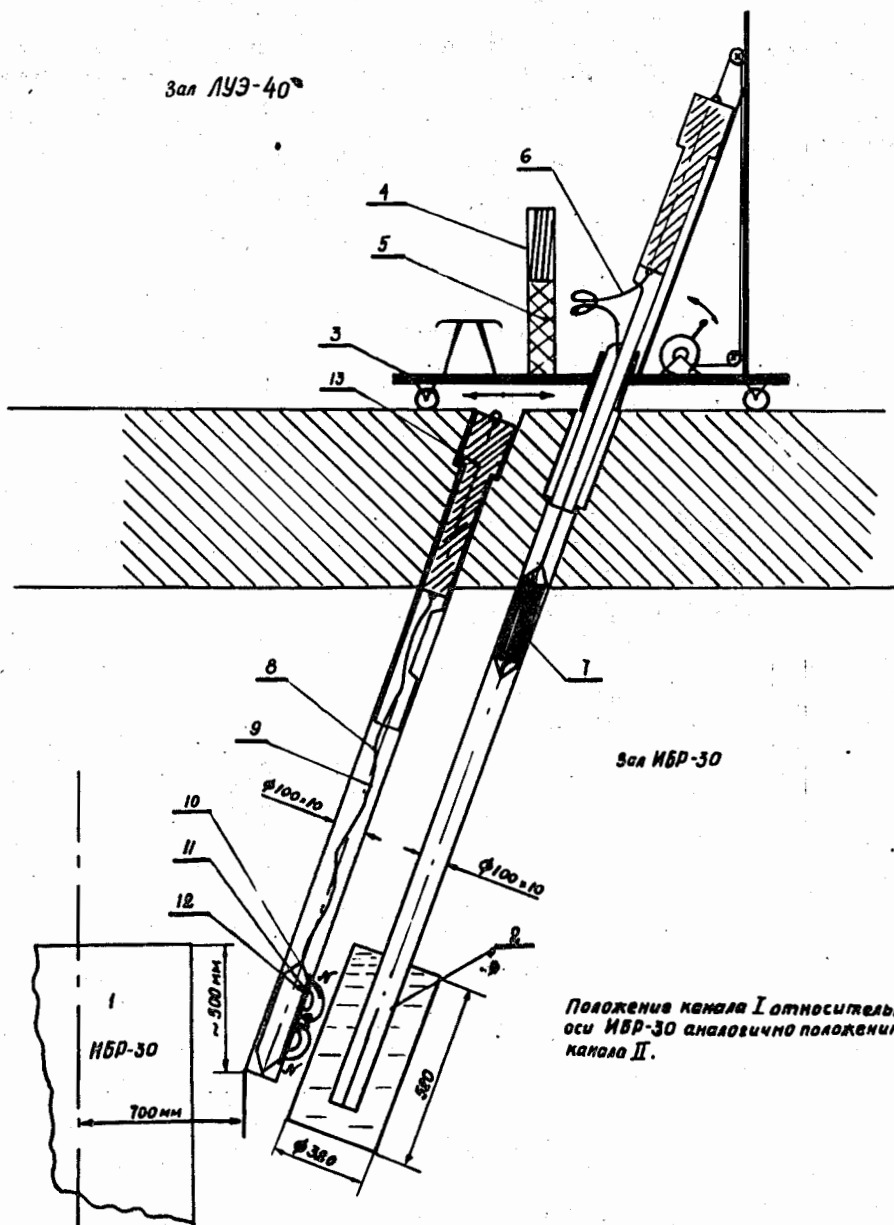


Рис. 1. Каналы для активации на ИБР-30. 1 - ИБР-30, 2 - канал I, 3 - тележка, 4 - защитное стекло, 5 - защитный экран, 6 - капроновый шнур, 7 - пенал, 8 - канал II, 9 - капроновый шнур, 10 - магнит, 11 - полоска железа, 12 - пенал, 13 - защитная специальная пробка.

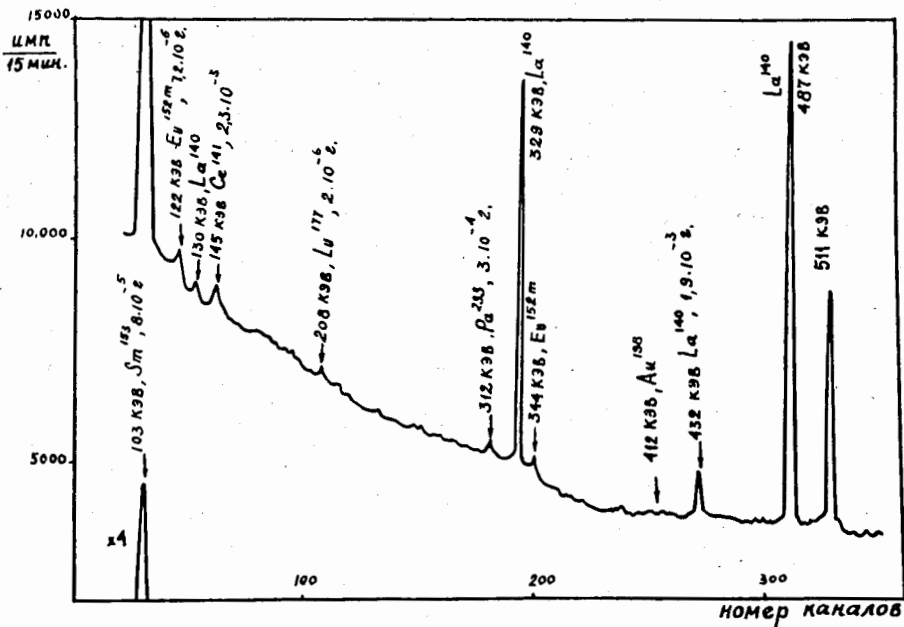


Рис. 2. Участок γ -спектра образца горной породы, облучаемого в первом канале. Время облучения - 48 часов, время измерения - 15 мин. после выдержки в течение 3 суток.

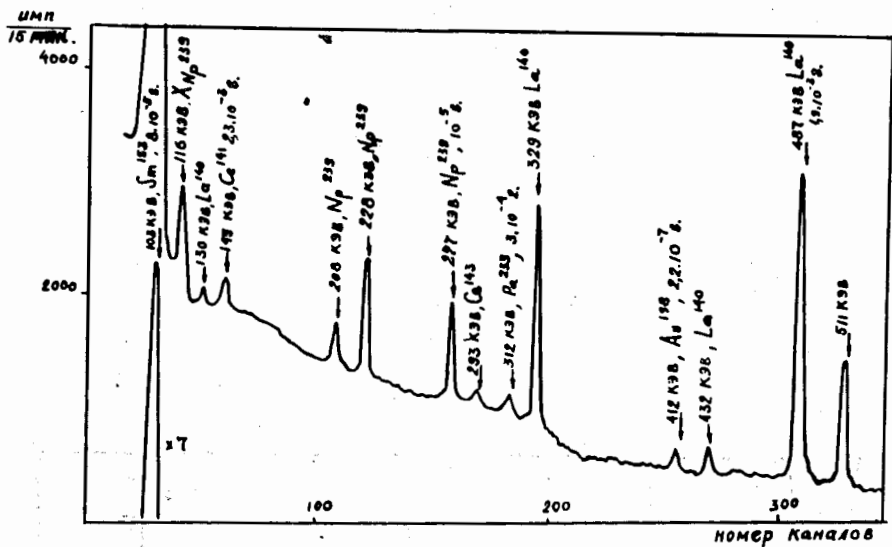


Рис. 3. Участок γ -спектра образца горной породы, облучаемого во втором канале /эпитепловыми нейтронами/. Время облучения - 48 часов, время измерения-15 мин. после выдержки в течение 3 суток.