

## АНАЛИЗ ЭЛЕМЕНТНОГО И ИЗОТОПНОГО СОСТАВА ОБРАЗЦОВ МЕТОДОМ НЕЙТРОННОЙ СПЕКТРОСКОПИИ НА ИМПУЛЬСНОМ ИСТОЧНИКЕ НЕЙТРОНОВ ИРЕН

*Н. В. Бажажина*<sup>1</sup>, *Ю. Д. Мареев*, *Л. Б. Пикельнер*,  
*П. В. Седышев*<sup>2</sup>, *В. Н. Швецов*

Объединенный институт ядерных исследований, Дубна

Одним из применений метода нейтронной спектроскопии для прикладных целей является неразрушающее определение изотопного состава исследуемого образца. Метод основан на регистрации нейтронных резонансов и измерении выхода продуктов реакции в этих резонансах. Энергии резонансов известны практически для всех стабильных ядер, причем набор энергии не совпадает полностью ни для одной пары изотопов, что позволяет определить изотопную принадлежность. Подобные измерения были проведены для ряда мишеней на установке ИРЕН.

One of the applications of the neutron spectroscopy method for applied purposes is a non-destructive determination of the isotopic composition of samples under study. The method is based on the registration of neutron resonances and the measurement of the yield of reaction products in the resonances. The resonance energies are known practically for all stable nuclei and set of energies does not coincide completely for any pair of isotopes. It allows determining isotope composition. These measurements have been performed for a number of targets at IREN facility.

PACS: 29.30.Hs

### ВВЕДЕНИЕ

Вскоре после открытия нейтрона Дж. Чедвиком [1] в ряде экспериментов было обнаружено явление усиления вероятности поглощения нейтронов различными ядрами в зависимости от энергии [2–4] — началась эра нейтронной спектроскопии. С появлением интенсивных нейтронных источников на основе ускорителей и реакторов стало возможным реализовать методику времени пролета — наиболее прецизионный метод определения энергии нейтрона. Развитие методов нейтронной спектроскопии на импульсных и стационарных источниках нейтронов описано во многих монографиях и обзорах [5–8].

В ряде физических и технических исследований возникает потребность в определении элементного и изотопного состава образцов без их разрушения. Возможность такого

---

<sup>1</sup>E-mail: bajajina@nf.jinr.ru

<sup>2</sup>E-mail: sedyshev@nf.jinr.ru

анализа предоставляет среди прочих и метод спектроскопии нейтронных резонансов, который дает информацию о возбужденных состояниях компаунд-ядра, образованного в результате захвата нейтрона материнским ядром.

Идея метода заключается в наблюдении нейтронных резонансов, т. е. максимумов в энергетической зависимости сечения взаимодействия нейтрона с ядром. К настоящему времени в области энергий нейтрона до нескольких десятков кэВ идентифицированы резонансы практически для всех ядер [9,10]. При этом энергия, при которой наблюдается резонанс, и его параметры не совпадают полностью ни для одной пары ядер. Таким образом, измерив энергетическое положение резонансов, можно определить элементный и изотопный состав образца, а вычислив площади под резонансами — найти количество ядер данного элемента или изотопа.

## 1. МЕТОД НЕЙТРОННОЙ РЕЗОНАНСНОЙ СПЕКТРОСКОПИИ

Метод нейтронной резонансной спектроскопии для неразрушающего анализа элементного и изотопного состава образцов был впервые описан в работах Х. Постмы с соавторами [11, 12].

Наиболее надежный способ определения энергии нейтрона и идентификации резонансов — это метод времени пролета. Для его реализации необходим импульсный источник нейтронов и детектор, регистрирующий нейтроны или продукты реакции взаимодействия нейтрона с ядрами образца, расположенный на расстоянии  $L$  от источника. Энергия нейтрона связана с временем пролета простым числовым соотношением:

$$E = \frac{(72,3L)^2}{t^2}. \quad (1)$$

Здесь  $E$  — энергия нейтрона в электронвольтах;  $L$  — расстояние между детектором и источником в метрах и  $t$  — время пролета в микросекундах.

Данная работа была выполнена на источнике резонансных нейтронов ИРЕН на базе линейного ускорителя электронов в Лаборатории нейтронной физики им. И. М. Франка [13]. Установка ИРЕН — интенсивный импульсный источник резонансных нейтронов — предназначена для ядерно-физических исследований с использованием метода времени пролета в области энергий нейтронов до нескольких кэВ. Он представляет собой комбинацию из линейного ускорителя электронов и мишени из сплава вольфрам–никель–железо, содержащего 90 % вольфрама. Нейтроны в мишени рождаются в результате двухступенчатого процесса. Вначале ускоренные электроны останавливаются в мишени, рождая тормозные  $\gamma$ -кванты. Энергетический спектр  $\gamma$ -квантов ограничен сверху максимальной энергией ускоренных электронов. Затем в результате взаимодействия высокоэнергетичных  $\gamma$ -квантов с ядрами вольфрама рождаются нейтроны. Основные параметры установки ИРЕН приведены в табл. 1.

Определение элементного и изотопного состава образцов проводилось путем регистрации нейтронного радиационного захвата материалом образца. Для регистрации  $\gamma$ -квантов использовался многосекционный жидкостный сцинтилляционный детектор, созданный в ЛНФ ОИЯИ [14]. Детектор состоит из шести независимых секций, образующих вместе цилиндр со сквозным каналом диаметром около 28 см вдоль пучка нейтронов. Длина детектора 60 см и общее количество сцинтиллятора 210 л. Каждая секция с двух торцов

Таблица 1. Параметры установки ИРЕН

|  |           |
|--|-----------|
| Ток электронов в импульсе, А           | 3         |
| Частота следования, Гц                 | 25        |
| Длительность электронного импульса, нс | 100       |
| Энергия электронов, МэВ                | 30        |
| Выход нейтронов, $c^{-1}$              | $10^{11}$ |

просматривается парой ФЭУ. Регистрирующая электроника позволяет выделять события с различными кратностями совпадений импульсов или работать в режиме одиночных импульсов. Для большинства ядер энергия связи нейтрона находится в диапазоне 5–10 МэВ, и возбуждение после захвата снимается каскадом из нескольких  $\gamma$ -квантов. При этом оптимальным режимом регистрации является режим двух- или трехкратных совпадений, что существенно снижает фон детектора практически без уменьшения эффективности регистрации ( $n, \gamma$ )-реакции. Для получения времяпролетных спектров применялся восьмивходовый многостоповый времяцифровой преобразователь (ВЦП), разработанный в ЛНФ ОИЯИ. На вход «Старт» ВЦП подавался импульс с синхронизатора установки ИРЕН, опережающий на фиксированное время (несколько микросекунд) нейтронный импульс, а на один из детекторных входов — сигнал после схемы совпадений детектора. Управление ВЦП и набор данных в память компьютера осуществлялись через порт USB. В процессе измерений мощность нейтронного источника постоянно мониторировалась. В качестве монитора использовался нейтронный счетчик СНМ-17. Сформированный сигнал от счетчика также подавался на один из детекторных входов ВЦП.

Типичный времяпролетный спектр, получаемый в измерениях с образцами, приведен на рис. 1. Сопоставление измеренной энергии обнаруженных резонансов с данными [9, 10] дает надежную идентификацию элементного и изотопного состава изучаемого образца.

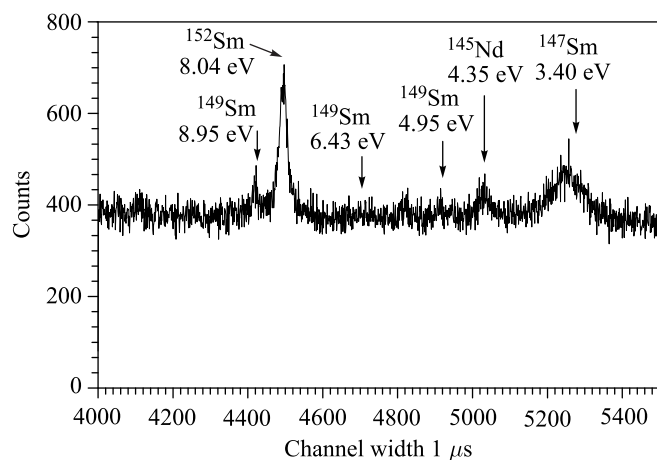


Рис. 1. Участок времяпролетного спектра, полученного при измерении с образцом из Монголии

Количество ядер элемента в составе образца определяется на основании соотношения (2), рассмотренного, например, в работе [15]:

$$\sum N = \Pi(E_0)\varepsilon_\gamma \frac{\Gamma_\gamma}{\Gamma} A. \quad (2)$$

Здесь  $\Pi(E_0)$  — полное число нейтронов, попавших на образец за время измерения на единичный интервал энергии при энергии резонанса (предполагается, что в пределах суммирования по резонансу плотность потока постоянна);  $\varepsilon_\gamma$  — эффективность регистрации радиационного захвата образцом;  $\Gamma_\gamma, \Gamma$  — радиационная и полная ширины резонанса;

$$A = \int_{-\infty}^{+\infty} [1 - T(E)] dE \quad (3)$$

— площадь провала на кривой пропускания,

$$T(E) = e^{-n\sigma(E)} \quad (4)$$

— энергетическая зависимость пропускания нейтронов образцом,  $\sigma(E)$  — полное сечение при данной энергии. Как показано в [16, 17], выражения (2), (3) нечувствительны к функции разрешения спектрометра. Сечение вблизи резонанса хорошо описывается известной формулой Брейта–Вигнера

$$\sigma(E) = \pi\lambda^2 \frac{g\Gamma_n\Gamma}{(E - E_0)^2 + \Gamma^2/4}, \quad (5)$$

где  $\Gamma_n$  — нейтронная ширина резонанса;  $E_0$  — резонансная энергия;  $E$  — энергия падающего нейтрона;  $g$  — спиновый статистический фактор;  $\lambda$  — длина волны падающего нейтрона. Выражение (5) справедливо только для неподвижного ядра. В реальном эксперименте доплеровское уширение часто оказывается больше полной ширины резонанса. Учет теплового движения приводит к более сложному выражению сечения (см. [16–18]).

В расчетах, выполненных в [16, 17], были использованы зависимости нейтронного сечения от доплеровского уширения и приведены таблицы, отнормированные на доплеровскую ширину:

$$\Delta = 2 \left( k\theta E_0 \frac{m}{M} \right)^{1/2} \quad (6)$$

— уширение Доплера;  $k$  — постоянная Больцмана;  $\theta$  — дебаевская температура образца;  $m/M$  — отношение масс нейтрона и исследуемого ядра. Графики зависимости величины  $A/\Delta$  от  $n\sigma_0$  и  $\Gamma/\Delta$  приведены на рис. 2.

Очевидно, что определяя в эксперименте величину  $A$  для резонанса и зная его параметры, можно найти количество ядер изотопа в образце. Однако для этого необходимо знать еще две величины:  $\Pi(E)$  и  $\varepsilon_\gamma$ . Произведение потока на эффективность можно определить, проведя дополнительные измерения с эталонным образцом [19]. В качестве эталона целесообразно использовать образец, содержащий известное количество ядер анализируемого элемента, и использовать для обработки те же резонансы, что и у исследуемого образца. При этом эффективность регистрации акта нейтронного захвата в одном и том же резонансе как для исследуемого, так и для эталонного образцов будет

одинакова. Тогда, зная из измерений количество отсчетов по резонансу для исследуемого  $\Sigma N_s$  и эталонного  $\Sigma N_r$  образцов, из (2) имеем

$$A_s = \frac{\sum N_s S_r N_{Mr}}{\sum N_r S_s N_{Ms}} A_r. \quad (7)$$

Здесь  $S_r$ ,  $S_s$  и  $N_{Mr}$ ,  $N_{Ms}$  — площади эталонного и исследуемого образцов и показания монитора нейтронного потока в соответствующих измерениях. Величина  $A_r$  для эталонного образца рассчитывается по известным данным, а из величины  $A_s$  определяется значение  $n_s$  для исследуемого образца. Схематически эта процедура показана на рис. 2.

Обработка данных бывает затруднена, если не представляется возможным определить площадь образца, которая входит в соотношение (7). Это в особенности проявляется, если элементы, из которых состоит исследуемый образец, имеют большую величину  $n\sigma$  при неправильной форме. В некоторой степени можно выйти из положения, используя резонанс с  $n\sigma < 1$ , тогда число отсчетов в резонансе пропорционально количеству ядер.

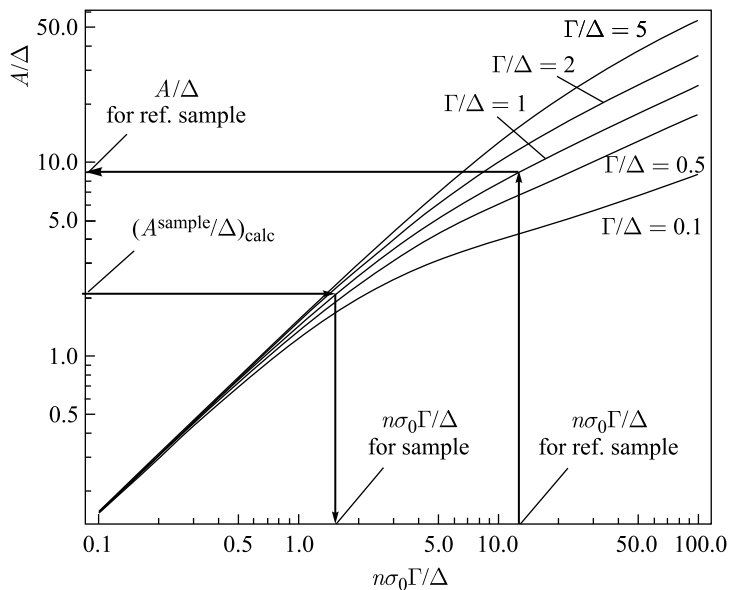


Рис. 2. Зависимость величины  $A$  от количества ядер и резонансных параметров

Таблица 2. Результаты исследования для образца руды

| Элемент | Масса элемента в образце, г | Массовая концентрация элемента в образце, г/кг |
|---------|-----------------------------|--|
| Nd      | $1,0 \pm 0,3$               | $1,83 \pm 0,55$                                |
| Sm      | $0,20 \pm 0,06$             | $0,37 \pm 0,11$                                |
| La      | $1,2 \pm 0,2$               | $2,19 \pm 0,44$                                |
| Mn      | $1,4 \pm 0,3$               | $2,56 \pm 0,51$                                |
| Fe      | $8,0 \pm 2,0$               | $14,60 \pm 3,65$                               |
| Ca      | $1,6 \pm 0,3$               | $2,92 \pm 0,53$                                |

Изложенным выше способом был проведен анализ ряда образцов руд и концентратов по запросу Центральной геологической лаборатории Министерства энергетики и природных ресурсов Монголии. Вре́мяпролетный спектр, приведенный на рис. 1, получен при анализе образца руды весом 547 г. Результаты анализа приведены в табл. 2.

## 2. ОПРЕДЕЛЕНИЕ СОСТАВА ОБРАЗЦА ИЗ ЭНЕРГЕТИЧЕСКОГО ХОДА СЕЧЕНИЯ

Метод, основанный на анализе резонансов, применим не для всех образцов. У некоторых элементов, особенно легких, отсутствуют резонансы в доступной области энергий, а имеет место только потенциальное рассеяние, которое практически постоянно в широком диапазоне энергии и не позволяет выделить определенный элемент. Исключение составляют такие элементы, как бор и литий, имеющие большое сечение захвата с известной зависимостью от энергии. Тогда, измеряя энергетическую зависимость пропускания, можно определить содержание этих элементов в образце.

Пропускание (4) образца, состоящего из одного изотопа, при данной энергии, согласно определению

$$T(E) = \frac{N(E)}{N_0(E)} = e^{-n\sigma(E)}. \quad (8)$$

Здесь  $N$  и  $N_0$  — число зарегистрированных нейтронов в измерениях с образцом в пучке и без образца соответственно. Для образца, содержащего несколько элементов или изотопов, зависимость (8) будет иметь вид

$$T(E) = \exp\left(-\sum_i n_i \sigma_i(E)\right), \quad (9)$$

где суммирование идет по содержащимся в образце элементам и изотопам. В области энергий нейтронов  $\sim 1$  эВ –  $\sim 1$  кэВ для большинства изотопов вклад в полное сечение дают сечение захвата  $\sigma_c$  и упругое рассеяние  $\sigma_{sc}$ . При этом, если ближайшие резонансы расположены достаточно далеко ( $\sim 10$  кэВ), то сечение рассеяния определяется только потенциальным рассеянием, которое постоянно в указанном диапазоне, а сечение захвата с хорошей точностью подчиняется известному закону  $1/v$ . В ряде случаев из анализа зависимости (9) можно выявить содержание элемента в образце.

Такой метод был применен для анализа образцов керамики новых композитных материалов, синтезированных в Белорусском государственном университете (Минск) [20]. В качестве основы для приготовления материалов служили термостойкие фосфатные композиции, состоящие из алюмофосфатной связки и наполнителя, в состав которого входят корунд ( $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ ) и нитрид алюминия. Композиции модифицировались различными борными соединениями для придания им свойств нейтронной защиты. Необходимо было проверить содержание борного соединения в образцах.

Измерения проводились с тем же сцинтиляционным детектором, внутри которого вместо образца устанавливался конвертер, эффективно преобразующий поглощающиеся нейтроны в  $\gamma$ -кванты [14]. Таким образом, детектор регистрировал нейтроны, попавшие в конвертер. Образцы — диски диаметром 30 мм и толщиной 1–3 мм — закреплялись на входном отверстии коллиматора диаметром 28 мм, расположенного на оси пучка между

источником нейтронов и детектором на пролетной базе 25 м. В самом начале нейтронно-вода (10 м) были установлены фильтры из In, Mn, Ta для определения фона. Для ряда резонансов этих элементов величины  $n\sigma$  настолько большие, что нейтроны соответствующих энергий практически полностью выводятся из прямого пучка при прохождении через эти материалы. Фильтры находились в пучке постоянно, как в измерениях с образцом, так и в измерениях с прямым пучком.

Для анализа содержания бора выражение (9) может быть представлено как

$$T(E) = C \exp \left( -\frac{\sqrt{E^{\text{th}}}}{\sqrt{E}} \left( n_B \sigma_{cB}^{\text{th}} + \sum_i n_i \sigma_i^{\text{th}} \right) \right). \quad (10)$$

Здесь  $C$  — постоянная, определяющая ослабление нейтронного потока за счет потенциального рассеяния ядрами образца; индексом «В» обозначены величины, относящиеся к бору, а сечение захвата выражено через параметры:

$$\sigma_c(E) = \sigma_c^{\text{th}} \frac{\sqrt{E^{\text{th}}}}{\sqrt{E}}, \quad (11)$$

где  $\sigma_c^{\text{th}} = (3837 \pm 9)$  б [9] — сечение при тепловой энергии  $E^{\text{th}} = 0,025$  эВ. Из технологии изготовления было известно, что содержание бора в образцах такого же порядка, что и других элементов. Так как сечение захвата на боре более чем на три порядка выше, чем на других элементах образца, а количество ядер бора и других элементов сравнимо, вкладом в коэффициент ослабления от других элементов можно пренебречь.

Результаты измерения пропускания нейтронов (после выделения вклада от рассеяния) через керамический образец приведены на рис.3. Там же указано  $n$ , которое соответствует наилучшему описанию экспериментальных данных. Зная размеры образца, нетрудно определить массу бора, содержащегося в нем.

Таким образом, представленные варианты определения элементного и изотопного состава методом нейтронной спектроскопии могут быть применены для исследования различных образцов.

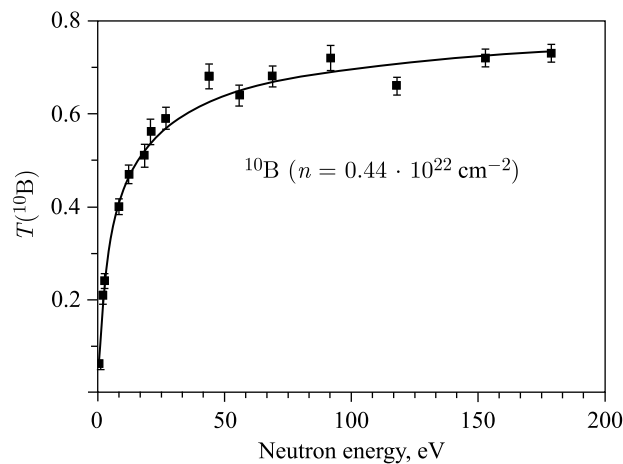


Рис. 3. Пропускание  $^{10}\text{B}$  в зависимости от энергии нейтронов. Квадраты — экспериментальные данные; кривая — расчет с  $n(^{10}\text{B}) = 0,44 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-2}$

## ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Описанные выше методы анализа элементного и изотопного состава образцов с использованием нейтронной спектроскопии являются дополняющими к другим нейтронным аналитическим методам — нейтронному активационному анализу и анализу по мгновенным  $\gamma$ -квантам радиационного захвата (Prompt Gamma Activation Analysis — PGAA). В работах группы Х. Постмы [11, 12] показано, что анализ по нейтронным резонансам в радиационном захвате (NRCA) по чувствительности не уступает PGAA. Вместе с тем он обладает рядом достоинств: неразрушающим характером, практическим отсутствием наведенной активности, принципиальной возможностью исследования образцов любой формы и размера, чувствительностью к изотопному составу образца. Это делает его эффективным для исследований археологических артефактов и предметов культурного наследия.

В течение 2009–2014 гг. функционировала первая очередь установки ИРЕН — с одной ускоряющей секцией и клистроном импульсной мощностью 20 МВт, что давало выход нейтронов  $\sim 10^{11} \text{ с}^{-1}$ . Несмотря на это, установка оказалась востребованной в ряде прикладных исследований. Одно из них — развитие и применение методов нейтронной спектроскопии для элементного и изотопного анализа образцов. За это время регулярно проводился анализ рудных проб, привезенных из Монгольской центральной лаборатории, и композитных образцов, доставленных из Белорусского государственного университета. Совместно с ГАИШ МГУ проведены исследования по поиску космической пыли в различных образцах.

В начале 2014 г. начаты работы по модернизации установки ИРЕН с целью достижения проектных параметров (интенсивность нейтронов  $\sim 10^{13} \text{ с}^{-1}$ ) к 2016 г. Увеличение интенсивности на два порядка существенно расширит возможности применения методов нейтронной спектроскопии для элементного и изотопного состава образцов.

Авторы выражают благодарность персоналу ИРЕН, обеспечивающему регулярную работу установки. Также авторы признательны С. И. Неговелову за предоставление и помощь в эксплуатации монитора для контроля выхода нейтронов из мишени.

## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Chadwick J.* Possible Existence of a Neutron // *Nature*. 1932. V. 129, No. 3252. P. 312.
2. *Moon P. B., Tillman J. R.* Evidence on the Velocities of “Slow” Neutrons // *Nature*. 1935. V. 135, No. 3422. P. 904.
3. *Bjerge T., Westcott C. H.* On the Slowing down of Neutrons in Various Substances Containing Hydrogen // *Proc. Roy. Soc. A*. 1935. V. 150. P. 709–728.
4. *Artsimovitch L. et al.* Au Sujet de la Capture de Neutrons Lents par un Noyau // *Compt. Rend.* 1935. V. 0200. P. 2159–2162.
5. *Lynn J. E.* The Theory of Neutron Resonance Reactions. Oxford: Clarendon Press, 1968.
6. *Experimental Neutron Resonance Spectroscopy* / Ed. J. A. Harvey. New York; London: Acad. Press, 1970.
7. *Пикельнер Л. Б., Попов Ю. П., Шаранов Э. И.* Светосильная нейтронная спектроскопия ядер // *УФН*. 1982. Т. 137, вып. 1. С. 39–84.
8. *Попов Ю. П.* Нейтронная спектроскопия на рубеже веков // *ЭЧАЯ*. 2003. Т. 34, вып. 2. С. 448–473.



9. *Mughabghab S. F., Divadeenam M., Holden N. E.* Neutron Resonance Parameters and Thermal Cross Sections. Acad. Press, 1981.
10. *Sukhoruchkin S. I., Soroko Z. N., Deriglazov V. V.* Low Energy Neutron Physics. Landolt-Börnstein. V. I/16B. Berlin: Springer Verlag, 1998.
11. *Postma H. et al.* Neutron-Resonance Capture Analysis of Materials // J. Radioanal. Nucl. Chem. 2001. V. 248, No. 1. P. 115–120.
12. *Postma H., Schillebeeckx P., Halbertsma R. B.* Neutron Resonance Capture Analysis of Some Genuine and Fake Etruscan Copper Alloy Statuettes // Archaeometry. 2004. V. 46, No. 4. P. 635–646.
13. *Belikov O. V. et al.* Physical Start-up of the First Stage of IREN Facility // J. Phys.: Conf. Ser. 2010. V. 205. P. 012053.
14. *Малэцки Х. и др.* Детектор нейтронов и гамма-лучей для работ в области нейтронной спектроскопии. Сообщ. ОИЯИ 13-6609. Дубна, 1972.
15. *Зелигер Д. и др.* Нейтронные резонансы брома // ЖЭТФ. 1963. Т. 45. С. 1294.
16. *Ефимов В. Н., Шелонцев И. И.* Расчет графиков для определения параметров нейтронных резонансов по методу пропускания образца. Препринт ОИЯИ Р-641. Дубна, 1961.
17. *Лукьянов А. А.* Структура нейтронных сечений. М.: Атомиздат, 1978.
18. *Melkonian E., Havens W. W., Jr., Rainwater L. J.* Slow Neutron Velocity Spectrometer Studies. V. Re, Ta, Ru, Cr, Ga // Phys. Rev. 1953. V. 46, No. 3. P. 702.
19. *Пикельнер Л. Б., Шаранов Э. И.* Методы калибровки при измерении сечения радиационного захвата нейтронов. Препринт ОИЯИ Р-1547. Дубна, 1964.
20. *Kuzhir P. P. et al.* Boron Enriched Unfired Phosphate Ceramics as Neutron Protector // Nanosci. Nanotechnol. Lett. 2012. V. 4. P. 1104–1109.

Получено 27 декабря 2014 г.