



Выход нейтронов по реакции (α, n) на Be, B, C, O, F, Na, Mg, Al и Si под действием α -частиц тория, урана и их продуктов распада

Г. В. Горшков, О. С. Цветков

Количественно исследован выход нейтронов по реакции (α, n) на бериллии, боре, углеороде, кислороде, фторе, натрии, магнии, алюминии и кремнии под действием α -частиц ториевого и уранового радиоактивных семейств. Найдена полуэмпирическая зависимость выхода нейтронов от весового состава исследуемых источников.

На основании экспериментальных данных выведены эмпирические формулы зависимости выхода нейтронов для исследуемых элементов от энергии α -частиц. Результаты исследования необходимы для количественной оценки естественного нейтронного излучения горных пород и минералов.

С нейтронным излучением и процессами, которые приводят к его образованию в недрах земной коры, связаны сложные и многообразные ядерные превращения. Вследствие этих превращений, происходящих в течение миллиардов лет, в природных образованиях накапливаются некоторые изотопы, что проявляется в сдвигах относительной изотопной распространенности у ряда элементов (в частности, гелия, лития, азота, неона, аргона, ксенона, криптона) [1—18]. Среди известных к настоящему времени процессов, вызывающих естественное нейтронное излучение горных пород и минералов, необходимо выделить следующие: 1) спонтанное деление тяжелых изотопов, главным образом U^{238} ; 2) реакции типа (α, n) на легких элементах под действием естественных α -излучателей; 3) генерацию нейтронов в земной коре под действием космического излучения; 4) нейтронно-индуцированное деление U^{235} ; 5) реакции типа (γ, n) на дейтерии и бериллии.

Выход нейтронов по реакции (α, n) для наиболее распространенных легких элементов земной коры под действием α -частиц уранового и особенно ториевого семейств мало изучен. Авторы работы [19] провели опыты по определению выхода нейтронов по реакции (α, n) с урановыми и ториевыми препаратами в смеси с соединениями легких элементов. К сожалению, полученные результаты имеют лишь качественный характер и недостаточны для оцен-

ки вероятности (α, n) -реакций с различными элементами.

В работе [2] был исследован выход нейтронов для основных составляющих компонентов щелочного гранита, тщательно перемешанных с тонко измельченным урановым и ториевым препаратами. Выход нейтронов составил 0,028 нейтр/сек·г тория и 0,066 нейтр/сек·г урана. В работе [20] описаны опыты по определению выхода нейтронов примерно для 30 химических соединений, пород и минералов под действием α -частиц радона и его продуктов распада. При этом также было показано, что наибольший вклад в наблюдаемый выход нейтронов, например, для гранитов, сланца и глауконита вносят алюминий, кремний, кислород, натрий и магний.

Цель настоящей работы — определить выход нейтронов по реакции (α, n) на бериллии, боре, углеороде, кислороде, фторе, натрии, магнии, алюминии и кремнии под действием α -частиц урана, тория и их продуктов распада включительно до полония и ThC'.

Число нейтронов, испускаемых источниками, измерялось при помощи сцинтилляционного счетчика медленных нейтронов [21].

Отметим, что ввиду незначительной нейтронной интенсивности исследуемых источников (примерно 0,5—10 нейтр/сек·4π) все измерения проводились в подземном помещении на глубине, соответствующей примерно 200 м водного эквивалента [21, 22]. Нижний предел

чувствительности установки в условиях опыта при регистрации нейтронного излучения в эквиваленте спектра полоний-бериллиевого источника соответствовал 0,05 нейтр/сек.4л.

Известно, что выход нейтронов из (α, n) -источников, представляющих смесь α -излучателя и вещества, испускающего нейтроны, зависит от весового отношения последних, степени измельчения компонентов смеси, полноты их перемешивания, химической чистоты и от энергии α -частиц.

Реакции (α, n) в настоящей работе осуществлялись бомбардировкой легких элементов природного изотопного состава и их соединений, которые брались в большинстве случаев с известным составом примесей, α -частицами уранового и ториевого семейств. Содержание примесей обычно не превышало 0,5—1%. Средний размер частиц порошков составлял 4—40 мк.

Урановый препарат по данным анализов состоял из 29,5% урана, $\leq 0,005\%$ тория, основной компонент примеси — $\sim 35\%$ окиси кремния. Коэффициент радиоактивного равновесия уранового ряда 97,8%, коэффициент эманирования измельченного препарата 12,8%. Распределение частиц уранового препарата по размерам определялось под микроскопом, и было найдено, что наиболее вероятный размер частиц 5,5 мк, а средний размер 6,35 мк. Содержание урана определяли весовым купферовым методом [23].

В качестве α -излучателя ториевого семейства была использована «старая» химически чистая окись тория. Содержание тория в ней, определенное весовым оксалатным методом [23], составляло 86,0%, коэффициент радиоактивного равновесия 59%. Наиболее вероятный размер частиц 2,0 мк, а средний размер 2,5 мк. Для изучения зависимости выхода нейтронов от состава источника были проведены измерения со следующими источниками:

$\text{ThO}_2 + \text{Be}$, $\text{ThO}_2 + \text{BeO}$, $\text{ThO}_2 + \text{Al}$, $\text{ThO}_2 + \text{Al}_2\text{O}_3$,
 $\text{ThO}_2 + \text{MgO}$, $\text{U}_{\text{преп}} + \text{BeO}$, $\text{U}_{\text{преп}} + \text{Al}_2\text{O}_3$,
 $\text{U}_{\text{преп}} + \text{MgO}$, $\text{U}_{\text{преп}} + \text{B}$, $\text{U}_{\text{преп}} + \text{Al}$.

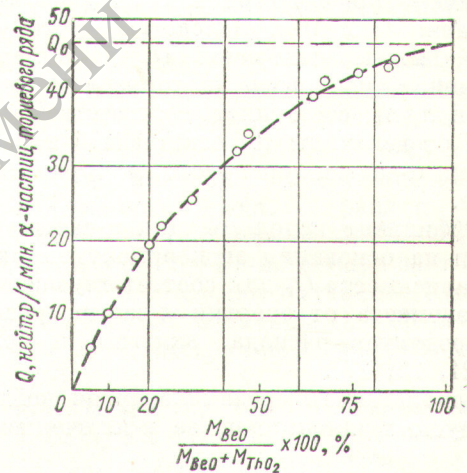
Найдено, что в случае однородной смеси α -излучателя и мишени, испускающей нейтроны, зависимость выхода от весового состава удовлетворительно выражается формулой

$$Q = \sum_{k=1}^n Q_{0k} \frac{N_k S_k}{\sum_{i=1}^n N_i S_i}, \quad (1)$$

где Q — выход нейтронов из мишени; Q_{0k} — максимальный выход нейтронов на k -м элементе, входящем в состав мишени, т. е. выход при $\frac{N_k S_k}{\sum_{i=1}^n N_i S_i} \rightarrow 1$; N_k — относительное число атомов k -го элемента; S_k — относительная атомная тормозная способность; n — число элементов в составе мишени.

Значения атомных тормозных способностей элементов были взяты из данных работы [24] для α -частиц с энергией ~ 6 Мэв.

На рисунке в качестве примера представлена зависимость выхода нейтронов от весового состава источника для $\text{ThO}_2 + \text{BeO}$. Аналогичные результаты были получены и для других источников.



Зависимость выхода нейтронов $\text{ThO}_2 + \text{BeO}$ -источника от весового состава:

Q_0 — максимальный выход нейтронов; — — — выход Q , рассчитанный по формуле (1); \circ — экспериментальные точки.

Ввиду конечного размера зерен уранового и ториевого препаратов необходимо учитывать торможение α -частиц в зернах самого радиоактивного вещества. В соответствии с данными наблюдения под микроскопом можно было принять, что форма зерен α -препарата близка к шаровой. Тогда согласно работе [25] средняя длина пути α -частиц внутри сферического источника радиусом R равна $\bar{l} = \frac{3}{4} R$.

Выразим расстояние \bar{l} (для случая, когда $R \ll l$) через соответствующий ему пробег в воздухе $l_{\text{возд}}$. Принимая значение l обратно пропорциональным тормозной способности среды,

получим

$$l_{\text{возд}} = \frac{\bar{l} N_{\alpha} S_{\alpha}}{N_{\text{возд}}},$$

где $N_{\text{возд}}$, N_{α} — соответственно число атомов в 1 см^3 воздуха и 1 см^3 препарата; S_{α} — относительная атомная тормозная способность элементов препарата.

Если $\bar{L}_{\text{возд}}$ — средний пробег α -частицы с энергией E в воздухе, то разность $\bar{L}_{\text{возд}} - \bar{l}_{\text{возд}}$ дает остаточный средний пробег, а следовательно, и энергию α -частицы.

Расчет, проведенный указанным выше способом, показывает, что для ториевого препарата торможение в зернах самого α -излучателя (например, для α -частиц ThA, $E_{\alpha} = 6,775 \text{ Мэв}$) составляет $0,30 \text{ Мэв}$; для уранового препарата (например, для α -частиц RaC', $E_{\alpha} = 7,68 \text{ Мэв}$) оно равно $1,12 \text{ Мэв}$. Вследствие этого уменьшение выхода нейтронов Q , например для источников уранового и ториевого семейств с бериллием, составляет соответственно $0,47$ и $0,87$ от величины Q_0 , отвечающей начальной энергии α -частиц уранового и ториевого семейств.

Коэффициент использования α -частиц определяли на основании экспериментальных данных зависимости Q_0 для соответствующего легкого элемента от энергии α -частиц радона и его продуктов распада, включая и полоний [20, 21, 26, 27].

Предполагаемая средняя энергия нейтронов исследуемых источников, за исключением нат-

риевых, лежит в пределах $1,5-5 \text{ Мэв}$. Согласно данным калибровки [21] неопределенность в средней энергии нейтронов в 20% в данном интервале энергий приводит к погрешности в выходе, не превышающей $1,5-2\%$. Следовательно, для введения поправки на неволновость рабочей геометрии в условиях данного опыта можно воспользоваться средними значениями соответствующих радоновых нейтронных источников [26, 27].

Измеренные значения Q_0 для исследуемых элементов на миллион α -частиц уранового и ториевого семейств с учетом всех поправок показаны в табл. 1.

В тех случаях, когда измерить выход непосредственно на элементе не представлялось возможным (фтор, кислород, натрий), значение Q_0 вычислялось по формуле (1) на основании экспериментальных значений Q_0 для соответствующих химических соединений данного элемента. В этой же таблице для сравнения приведены результаты, вычисленные указанным выше способом для элементов, выход нейтронов для которых был измерен непосредственно (бериллий, бор, магний).

Данные табл. 1 содержат выходы нейтронов по (α, n)-реакции для исследуемых мишеней [для бериллия также по (γ, n)-реакции, выход по которой составляет лишь несколько процентов от выхода по (α, n)-реакции]. Выходы нейтронов за счет спонтанного деления, а также по (α, n)-реакции на элементах уранового и ториевого препаратов из результатов исключены путем предварительного измерения пре-

Таблица 1

Выход нейтронов на легких элементах

Мишень	Q_0 измер		Q_0 вычисл			Отношение выходов Q_0 (ториевого ряда) Q_0 (уранового ряда)
	уранового равновесного ряда	ториевого равновесного ряда	уранового ряда	ториевого ряда	по какому соединению вычислено	
Be	92±2	126±3	89±3	127±5	BeO	1,37
BeO	33±1	47±2	—	—	—	—
B	21±1	27±1	19±2	—	H ₃ BO ₃	1,29
H ₃ BO ₃	3,1±0,2	—	—	—	—	—
C	0,17±0,02	0,31±0,04	—	—	—	1,86
CaF ₂	7,0±0,3	11,2±0,3	—	—	—	—
F	—	—	12,7±0,5	20±1	CaF ₂	1,58
NaF	6,8±0,3	12,7±0,3	—	—	—	—
Na	—	—	1,9±0,5	2,9±0,4	CaF ₂ , NaF	1,53
Mg	2,1±0,3	3,6±0,2	2,0±0,4	3,3±0,2	MgO	1,71
MgO	1,4±0,2	2,0±0,1	—	—	—	—
Al	1,5±0,1	3,5±0,1	—	—	—	2,33
Al ₂ O ₃	0,8±0,1	1,8±0,1	—	—	—	—
O	—	—	0,2±0,1	0,37±0,15	Al, Al ₂ O ₃	1,85
Si	0,26±0,03	0,51±0,06	—	—	—	1,96

Значения n и k

Коэффициент	Элемент						
	Be	B	C	F	Mg	Al	Si
n	2,82	1,90	4,86	3,73	4,62	6,38	5,26
k	$7,28 \cdot 10^{-1}$	$8,3 \cdot 10^{-1}$	$3,32 \cdot 10^{-5}$	$2 \cdot 10^{-2}$	$6,23 \cdot 10^{-4}$	$1,78 \cdot 10^{-5}$	$2,84 \cdot 10^{-5}$

препаратов. Даны абсолютные квадратичные ошибки. Систематическая ошибка, связанная с калибровками эталонных нейтронных источников, неопределенностью средних энергий нейтронов исследуемых источников, экстраполяцией выхода Q к выходу Q_0 , т. е. выходу при $\frac{N_k S_k}{\sum_{i=1}^n N_i S_i} \rightarrow 1$, и с учетом торможения α -частиц

в зернах радиоактивных препаратов, оценена нами, за исключением выхода на натрия, в 10—15%. Систематическая ошибка для натрия в связи с неопределенностью средней энергии нейтронов может быть больше.

На основании экспериментальных данных по выходу нейтронов из соответствующих мишеней для α -частиц полония ($E_\alpha = 5,30$ Мэв) [21], RaC' ($E_\alpha = 7,68$ Мэв) [26], суммы Rn+RaA+RaC' [20, 27], а также на основании результатов настоящей работы для толстых мишеней выведены с некоторыми допущениями эмпирические формулы зависимости Q_0 от энергии α -частиц:

$$Q_0 = kE^n.$$

Значения коэффициентов k и n даны в табл. 2. Из приведенных значений коэффициентов следует, что наибольшая зависимость выхода от энергии наблюдается для алюминия и кремния, наименьшая — для бора и бериллия.

Максимальный выход нейтронов радий-бериллиевого источника согласно настоящей работе равен $1,8 \cdot 10^7$ нейтр/сек·кюри радия, не содержащего полония, и $2,1 \cdot 10^7$ нейтр/сек·кюри радия с учетом накопления полония. Эти результаты хорошо согласуются с соответствующей величиной $1,7 \cdot 10^7$ нейтр/сек·кюри радия, полученной для свежеработанного радия [28].

Расчет Q_0 согласно полученной зависимости $Q_0 = 0,728 E^{2,82}$ дает для RaTh α +Be-источника $2,69 \cdot 10^7$ нейтр/сек·кюри RaTh, а для Ac²²⁷+Be-источника $2,63 \cdot 10^7$ нейтр/сек·кюри Ac²²⁷, т. е. значение, лишь на 4% большее измеренного выхода, равного $3,25 \times 10^5$ нейтр/сек·12,9 мкюри Ac²²⁷ [29].

Расчет Q_0 для Pu+Be-источника дает 73 нейтрона на 1 млн. α -частиц плутония. Это значение на 22% выше величины $Q_0 = 60$ нейтронов на 1 млн. α -частиц плутония, полученной в работе [29].

Можно показать, что отношение выходов $Q(\text{Ac} + \text{Be})/Q(\text{Ra} + \text{Be})$ согласно данным работ [30—32] оказывается равным 1,44; 1,55 и 1,53 соответственно. Отношение $Q(\text{Ac} + \text{Be})/Q(\text{Ra} + \text{Be})$ согласно настоящей работе равно 1,46.

Авторы благодарят Э. Г. Залецкого и С. А. Тимофеева за помощь при измерениях.

Поступила в Редакцию 16/VIII 1962 г.

ЛИТЕРАТУРА

1. L. Aldrich, A. Nier. Phys. Rev., 74, No. 9, 1225 (1948).
2. J. Pine, P. Morrison. Phys. Rev., 86, 606 (1952).
3. P. Morrison, D. Beard. Phys. Rev., 75, 1332 (1949).
4. К. Г. Орджоникидзе, В. Шютце. «Ж. эксперим. и теор. физ.», 29 (1955).
5. К. Г. Орджоникидзе. «Геохимия», № 1, 37 (1960).
6. W. White, N. Yagoda. Science, 111, 307 (1950).
7. G. Wetherill. Phys. Rev., 96, 679 (1954).
8. W. Burkhardt. Ann. Physik., Н. 1—6, 185 (1957).
9. W. Fleming, H. Thode. Phys. Rev., 90, 857 (1953).
10. Э. К. Герлинг. Современное состояние аргонового метода. М.—Л., Изд-во АН СССР, 1961.
11. Ю. А. Шуколоков. Диссертация, 1959.
12. В. Г. Хлопин. «Изв. АН СССР. Сер. хим.», № 6, 599 (1947).
13. J. Masnamara, H. Thode. Phys. Rev., 80, 471 (1950).
14. W. Fleming, H. Thode. Phys. Rev., 92, 378 (1953).

15. G. Wetherill. Phys. Rev., **92**, 907 (1953).
16. Э. К. Герлинг, Ю. А.] Шуколоков. «Радиохимия», **1**, 212 (1959).
17. C. Levine, G. Seaborg. J. Amer. Chem. Soc., **73**, 3278 (1951).
18. И. Е. Старик и др. «Геохимия», № 2, 142 (1957).
19. Л. Л. Кашкаров, В. В. Чердынцев. «Геохимия», № 7, 632 (1958).
20. Г. В. Горшков и др. «Атомная энергия», **14**, 544 (1963).
21. Г. В. Горшков, В. А. Зябкин, О. С. Цветков. «Атомная энергия», **13**, 65 (1962).
22. Г. В. Горшков и др. «Докл. АН СССР», **131**, 933 (1950).
23. В. В. Гиллебрандт и др. Практическое руководство по неорганическому анализу. М., ГОНТИ, 1957.
24. M. Livingston, H. Bethe. Rev. Mod. Phys. **9**, 245 (1937).
25. В. Г. Горшков, О. С. Цветков. «Ж. техн. физ.», **32**, 774 (1962).
26. Г. В. Горшков, В. И. Матвиенко. «Докл. АН СССР», **116**, 211 (1957).
27. М. А. Бак и др. «Труды РИАН», **9**, 107 (1959).
28. J. Marion, J. Fowler. Fast. Neutron Physics, N. Y. (1960).
29. O. Runnals, R. Boucher. Canad. J. Phys., **34**, 949 (1956).
30. E. Stuhlinger. Z. Phys., **114**, 185 (1939).
31. T. Vuergge. Proc. Roy. Soc., **164**, 243 (1938).
32. М. А. Бак и др. «Труды РИАН», **9**, 120 (1959).



РЕПОЗИТОРИЙ ГГУ имени Ф. СКОРНИЦЫНА