

О возможности анализа некоторых металлов на кислород путем регистрации запаздывающих нейтронов, образующихся в реакции $O^{18}(\gamma, p)N^{17}$

М. М. ДОРОШ, Н. П. МАЗЮКЕВИЧ, В. А. ШКОДА-УЛЬЯНОВ

УДК 543.53

Рассматривается вопрос о возможности использования реакции $O^{18}(\gamma, p)N^{17}$ для определения концентрации кислорода в слитках металлов путем регистрации запаздывающих нейтронов. Проведены расчеты выходов из примесей кислорода в толстых блоках Be, Ti, Zr. Создание сильноточных ускорителей на средних энергиях сделает возможной разработку конвейерного анализа металлов и сплавов.

Расширяющееся производство жаропрочных металлов и сплавов для атомной энергетики, самолето- и ракетостроения, научных исследований требует разработки новых достаточно быстрых и точных методов определения примесей, причем особое внимание уделяется примеси газов H_2 , N_2 , O_2 , присутствие которых ведет к уменьшению пластичности металлических деталей и конструкций.

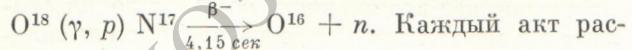
В связи с серьезными техническими трудностями, сопровождающими определение малых количеств кислорода в некоторых металлах (например, в Be, Ti, Zr [1, 2]), разработка новых и совершенствование существующих методов анализа на кислород становится особенно актуальной задачей. Чувствительность применяемых в настоящее время методов вакуумплавления и объемного растворения металла 10^{-1} — $10^{-2}\%$ [4, 3], и, кроме того, они трудоемки и продолжительны. Лучшими характеристиками обладает радиоактивационный метод. Использование ядерных реакторов для анализа содержания некоторых газов (в том числе и кислорода) в металлах заключается в активации образца потоком нейтронов, γ -квантов или заряженных частиц большой плотности и последующем измерении наведенной β -или γ -активности. Достигнутая чувствительность к кислороду составляет в среднем 10^{-3} — $10^{-4}\%$ [4, 5]. Однако ввиду сложности необходимого оборудования, значитель-

ной длительности облучения и по ряду других причин такой метод не всегда может быть применен для быстрого анализа в промышленных условиях. На практике часто надо знать среднее содержание кислорода, характеризующее определенную часть объема слитка или весь слиток целиком. Эту задачу можно решить при помощи фотонейтронного метода благодаря следующим его особенностям. Во-первых, в больших образцах при поглощении падающего пучка развивается электронно-фотонная лавина; во-вторых, нейтроны, испускаемые ядрами при поглощении γ -излучения, имеют значительную среднюю длину пробега и легко проходят сквозь толщу образца с такими размерами, которые обеспечивают полное поглощение первичного пучка.

Ядерно-физические методы анализа, требующие наличия высокоинтенсивного облучателя, можно внедрять в заводскую практику при использовании сильноточных ускорителей (микротронов, линейных ускорителей, сильноточных бетатронов). В настоящее время такие ускорители сконструированы и построены [6—9], они отличаются сравнительно высокими токами электронного пучка (10—100 мкA и выше) и небольшими габаритами. Применение их расширяет возможности осуществления анализа на местах производства металлов и сплавов путем регистрации продуктов различных ядерных реакций непосредственно во время облучения или после его прекращения. В этой связи представляется перспективным развитие такого метода анализа, при котором в образце создается некоторое количество ядер-предшественников запаздывающих нейтронов и изменяется выход этих нейтронов. В работе [10] для определения кислорода предложено регистрировать запаздывающие нейтроны, возникающие при распаде радиоактивного ядра N^{17} ,

образующегося при облучении образца нейтронным потоком реактора в результате реакций $O^{17}(n, p)N^{17}$; $O^{18}(n, d)N^{17}$ и $O^{18}(t, a)N^{17}$ через реакцию $Li^6(n, a)H^3$. Такое число реакций, приводящих к образованию N^{17} , в ряде случаев может представить определенное неудобство при анализе на кислород, но его легко обойти, если вместо первичного нейтронного потока использовать электронный или фотонный пучок. В этом случае исследуемый образец (например, слиток металла) должен быть одновременно частью цилиндра Фарадея, осуществляющего прецизионное измерение потока падающего излучения [11] (что сделать значительно легче, чем точно измерить поток нейтронов при использовании их в качестве первичного излучения), и источником запаздывающих нейтронов, возникающих в результате реакции $O^{18}(\gamma, p)N^{17}$. Как показано в работе [12], вклад реакции $O^{17}(n, p)N^{17}$ по сравнению с вкладом реакции $O^{18}(\gamma, p)N^{17}$ пренебрежимо мал. Заметим, что размеры образца, при которых электронное или фотонное излучение, эффективное к реакции $O^{18}(\gamma, p)N^{17}$, практически полностью поглощается, малы по сравнению с пробегом образующихся в фотоядерных реакциях нейтронов. Это дает возможность свести к минимуму вклад от всех реакций, вызываемых нейтронами и дающих в результате изотоп N^{17} .

Итак, пусть пучок электронов или γ -квантов облучает образец, содержащий кислород, и при определенной энергии пучка и достаточно больших размерах образца вызывает в нем развитие электронно-фотонной лавины. На ядрах изотопа O^{18} γ -кванты с энергией выше пороговой ($E = 16,4 \text{ MeV}$) вызывают (γ, p) -реакцию, приводящую к образованию β -активного изотопа N^{17} с периодом полураспада $T_{1/2} = 4,15 \text{ сек}$. Претерпевая β -распад, каждое ядро N^{17} превращается в стабильный изотоп O^{16} и нейtron. Схематически реакцию можно представить так:



Каждый акт распада сопровождается вылетом одного нейтрона, поэтому возникающую нейтронную «активность» также можно характеризовать периодом полураспада $4,15 \text{ сек}$. Облучение в течение примерно 20 сек приводит к насыщению образца активным изотопом N^{17} . При достижении насыщения в процессе активации количество образующихся за 1 сек ядер равно количеству запаздывающих нейтронов, испускаемых образцом за 1 сек . Регистрацию можно проводить как в промежутках между импульсами

ускорителя, так и после прекращения облучения, когда достигнуто насыщение. Но в обоих случаях счетная установка должна включаться спустя некоторое время (примерно через 1000 мксек) после импульса ускорителя. За это время мгновенные пейтроны, образовавшиеся в результате фотоядерных реакций, успевают замедлиться до тепловых энергий и поглотиться, и, следовательно, ошибка в счете запаздывающих нейтронов, обусловленная вкладом от мгновенных нейтронов, практически будет сведена к нулю.

Таким образом, появляется новая возможность определения концентрации кислорода в металлах и сплавах. Этот вывод подтверждается численными расчетами.

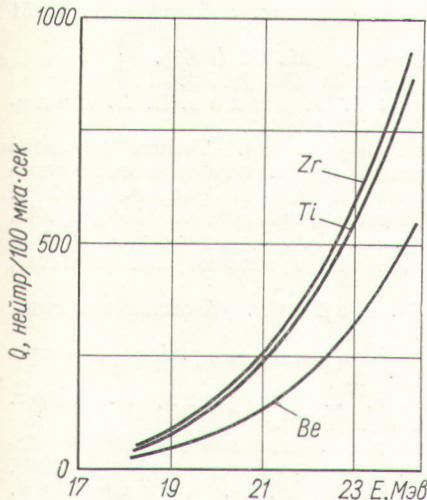
Суммарное количество актов (γ, p) -реакции на O^{18} (или максимальное количество запаздывающих нейтронов) можно найти расчетным путем по теории Беленьского — Тамма [13]. Нами использовано сечение (γ, p) -реакции на O^{18} из работы [12], критические энергии взяты из работы [14], изотопное содержание в естественном кислороде принято равным $0,2\%$, концентрация примеси кислорода в металле выбрана $10^{-4}\%$.

Максимальные выходы $Q(E)$ рассчитаны на электронный ток ускорителя 100 мка (см. таблицу и рисунок). Пользуясь этими данными, можно оценить время, необходимое для регистрации нейтронов с заданной статистической точностью, а также определить уровень насыщения образца изотопом N^{17} .

Примем скорость счета постоянной, что вполне возможно, если регистрация проводится в течение коротких промежутков времени между импульсами ускорителя. Пусть эффективность счетной установки $k = 1\%$, заданная статистическая точность регистрации $\delta = \pm 5\%$, длительность импульса схемы пропускания $\tau = 10000 \text{ мксек}$ при частоте $f = 50 \text{ Гц}$. Как

Максимальный выход запаздывающих нейтронов $Q(E)$ на $10^{-4}\%$ кислорода в некоторых металлах, $\text{нейтр}/100 \text{ мка} \cdot \text{сек}$

E, MeV	$Q_{Be}(E)$	$Q_{Ti}(E)$	$Q_{Zn}(E)$
18	10	20	30
19	40	60	80
20	70	140	170
21	130	240	270
22	200	370	400
23	300	540	590
24	480	780	830



Зависимость количества запаздывающих нейтронов от энергии электронного пучка (для $10^{-4}\%$ кислорода в металлах).

следует из таблицы, при токе ускорителя 100 мкA и энергии электронов $\sim 25 \text{ МэВ}$ количество образующихся за 1 сек активных ядер N^{17} (или запаздывающих нейтронов) в образце титана составляет $Q(25) \approx 1000 \text{ ядер}/100 \text{ мкA} \times \text{сек}$. Тогда скорость счета равна $kftQ = 5 \text{ нейтр/сек}$. Из выражения для статистической точности $\delta = \frac{1}{\sqrt{kftQt}}$ находим время измерения

$$t = \frac{1}{kftQ\delta^2} \approx 1,5 \text{ мин},$$

т. е. удобную для анализа величину. Из графика выходов (см. рисунок) видно, что эта величина характерна и для циркония, но для бериллия необходимое время измерения при неизменных условиях увеличится приблизительно в два раза. Следует отметить, что некоторого уменьшения t при постоянном значении δ можно добиться путем повышения эффективности счета нейтронов k и увеличения τ .

Технически более просто осуществить установку для регистрации после насыщения. Этой методике следует отдать предпочтение в тех случаях, когда для облучения используется ускоритель с большим током пучка (порядка 1 мкA и выше) или же когда содержание кислорода в образцах больше $10^{-4}\%$.

Пользуясь формулой

$$Q_n(E) = \frac{Q(E) T_{1/2}}{\ln 2} \left(1 - e^{-\frac{t \ln 2}{T_{1/2}}} \right),$$

находим, что выход запаздывающих нейтронов $Q_n(E)$, полученный после облучения в течение $t = 5 \cdot T_{1/2}$ (энергия 25 МэВ , ток ускорителя 100 мкA , содержание кислорода в титане $10^{-4}\%$), примерно равен 6000 нейтронов. Технические сорта титана обычно содержат больше $0,01\%$ кислорода [15], и для них общее число запаздывающих нейтронов при насыщении должно составлять не менее $6 \cdot 10^5$ при рассматриваемых условиях опыта. Такой выход может быть зарегистрирован с достаточной точностью за короткий промежуток времени (длительность измерения не будет превышать 1 мин), что является существенным преимуществом предлагаемого здесь способа анализа.

В расчетах использовано значение тока электронов 100 мкA , которое уже сейчас характерно для некоторых типов ускорителей, и обсуждаются данные, полученные для тока именно такой величины. По этим данным можно также заключить, насколько удобен будет анализ при других условиях (других токах, концентрациях кислородной примеси и т. д.). В частности, если учесть, что загрязненность кислородом слитков металлов, выпускаемых промышленностью, на два порядка больше, чем использованная в расчетах, то результаты не изменятся при токе ускорителя, в 100 раз меньшем, т. е. 1 мкA . Осуществление этого не встречает практических трудностей уже в настоящее время. Учитывая сказанное относительно чистоты технического металла и современных возможностей ускорительной техники, можно заключить, что целесообразно попытаться экспериментально проверить изложенную здесь идею *.

В заключение отметим, что в предлагаемом методе определения кислорода в металлах (и других веществах) изотопный состав кисло-

* В период оформления работы для публикации получены предварительные экспериментальные результаты. С помощью BF_3 -счетчиков регистрировался выход запаздывающих нейтронов из образцов $\text{Cu} + \text{CuO}$ с различным количеством CuO (вес образца $1,5 \text{ кг}$) при облучении их до насыщения тормозным спектром бетатрона с верхней границей 25 МэВ (интенсивность на расстоянии 1 м от мишени $25-30 \text{ р/мин}$). Чувствительность метода $\sim 1\%$ кислорода в меди (ошибка результата $\pm 10\%$, время анализа $\sim 10 \text{ мин}$). Используя высоконапряженные облучающие установки [6-9, 16] (бетатрон [8] и микротрон [16], разработанные в Томском политехническом институте и Институте физических проблем АН СССР, могут дать, например, более 1000 и 3000 р/мин соответственно на расстоянии 1 м от мишени) и счетную аппаратуру с большей эффективностью, можно повысить чувствительность этого метода на несколько порядков.

рода в образце (т. е. процентное содержание изотопа O^{18} в кислородной примеси) предполагается точно известным. В том случае, когда можно ожидать отклонение изотопного распределения кислорода в образце от естественного, его следует один раз определить для данной технологической схемы производства металла (или вещества).

Поступила в Редакцию 24/IV 1964 г.
В окончательной редакции 16/V 1966 г.

ЛИТЕРАТУРА

- Дж. Дарвин, Дж. Баддери. Бериллий. М., Изд-во иностр. лит., 1962.
- Н. Ф. Литвинова, З. М. Туровцева. Методы определения примесей в чистых металлах. В кн. «Труды Комиссии по аналитической химии». Т. XII. М., Изд-во АН СССР, 1960.
- И. А. Бerezин, В. И. Малышев. «Ж. аналит. хим.», 17, 1101 (1962).

- И. А. Маслов. «Заводск. лаборатория», 1, 51 (1964).
- L. Bate. Nucleonics, 21, 72 (1963).
- «Атомная энергия», 5, 589 (1958).
- С. П. Капица, В. Н. Быков, В. П. Мелехин. ЖЭТФ, 41, 368 (1961).
- В. А. Москалев и др. Тезисы докладов на IV Межвузовской научной конференции по электронным ускорителям, 13—17 февраля 1962 г. Томск, Изд-во Томского университета, 1962, стр. 41.
- О. А. Вальднер, А. А. Глазков, А. Н. Финогенов. «Приборы и техника эксперимента», 3, 29 (1963).
- С. Амиел, М. Пейсах. «Атомная энергия», 14, 535 (1963).
- В. А. ШкодаУльянов и др. Авторское свидетельство № 163782.
- W. Stephens, J. Narayan, R. Sherg. Phys. Rev., 82, 511 (1951).
- С. З. Беленький. Лавинные процессы в космических лучах. М.—Л., Гостехтеориздат, 1948.
- О. И. Довженко, А. А. Поманский. ЖЭТФ, 45, 268 (1963).
- Цветные металлы и сплавы. Методы испытаний. Ч. 2. М., Изд-во стандартов, 1964.
- С. П. Капица. «Атомная энергия», 18, 203 (1965).

Ускорение электронов в кольцевом фазotronе Физического института им. П. Н. Лебедева АН СССР

Л. Н. КАЗАНСКИЙ, В. Н. КАНУННИКОВ, А. А. КОЛОМЕНСКИЙ,
Е. П. ОВЧИННИКОВ, В. А. ПАПАДИЧЕВ, С. С. СЕМЕНОВ,
А. П. ФАТЕЕВ, Б. Н. ЯВЛОКОВ

УДК 621.384.612.3:621.384.612.4

Рассмотрены физические основы выбора параметров кольцевого фазотрона ФИАН и особенности его конструкции. Описан процесс запуска ускорителя. Обсуждаются результаты, полученные при работе с пучком.

В октябре 1965 г. в Физическом институте им. П. Н. Лебедева АН СССР запущен ускоритель — электронный радиально-секторный кольцевой фазotron (установка КФ) [1]. Кольцевой магнит ускорителя состоит из 40 одинаковых блоков. Сильная фокусировка обеспечивается тем, что поля в соседних блоках изменяются с радиусом по одному и тому же закону, но имеют противоположные направления [2, 3]. Постоянство поля во времени позволяет получать высокую интенсивность пучка частиц и осуществлять их накопление. Конструкция магнита дает возможность реализовать так называемый симметричный (или двухпучковый) режим [4, 5], позволяющий проводить ускорение, накопление и встречные соударения пучков, одновременно обращающихся в противоположных направлениях. В установке КФ пре-

дусмотрено использование индукционного и резонансного (фазotronного) ускорения электронов, а также исследование специальных режимов ускорения (стохастический, путем «фазового смещения» и т. п.).

Установка КФ была сооружена с целью экспериментальной проверки возможностей ускорителей типа кольцевого фазотрона для различных специальных режимов ускорения и накопления частиц.

Общий вид установки показан на рис. 1, где видны блоки электромагнита, импульсный генератор инъекции, бетатронные сердечники и резонатор. Основные параметры ускорителя приведены ниже:

Число элементов периодичности N	20
Показатель поля n	16
Число бетатронных колебаний за один оборот (при $f_0 = 0,09$):	
радиальных v_r	5,79
вертикальных v_z	2,38
Протяженность рабочей области поля	117—160 см
Напряженность рабочего поля	27—4200 э
Начало профилированного полюса	150 см