

Определение лития в твердых материалах по реакции $\text{Li}^6(n, \alpha)\text{H}^3$

Б. П. ЗВЕРЕВ, Ю. Ф. СИМАХИН, А. Г. ДУТОВ

УДК 543.53

Определению содержания лития в веществах нейтронноактивационным методом посвящен ряд работ. В некоторых из них используется реакция $\text{Li}^6(n, \alpha)\text{H}^3$ на тепловых нейтронах. В работе [1] для определения лития регистрируют β -частицы радиоактивного тритона. Энергия β -частиц 18,6 кэв, поэтому возникают большие трудности при применении детектора. В работе [2] используется вторичная реакция, в этом случае регистрируются запаздывающие нейтроны изотопа N^{17} . В работе [3] применяют вторичную реакцию $\text{O}^{16}(t, n)\text{F}^{18}$. Содержание лития определяют по активности F^{18} . В некоторых случаях регистрируют непосредственно заряженные частицы, образующиеся в реакции $\text{Li}^6(n, \alpha)\text{H}^3$. В работе [4] при определении изотопного состава лития с облучением на Po — Be-источнике нейтронов частицы регистрировали скинтиллятором ZnS .

На изотопе Li^7 протекает реакция $\text{Li}^7(n, \gamma)\text{Li}^8$ с сечением 36 мбарн, в результате которой образуется изотоп Li^8 с периодом полураспада 0,85 сек. В этом случае регистрируют β -частицы с $E_\beta = 13$ Мэв черенковским счетчиком [5]. Такие методы либо обладают низкой чувствительностью, либо требуют разрушения образца или применения образцовых препаратов из того же самого вещества, что и исследуемый, но это не всегда возможно. Ниже приводится методика определения содержания лития в твердых телах без разрушения образца и с применением образцовых препаратов из любого удобного материала.

Методика. Реакция $\text{Li}^6(n, \alpha)\text{H}^3$, протекающая на тепловых нейтронах с сечением 945 барн, эндотермическая. Выделяющаяся энергия ($Q = 4,78$ Мэв) делится между α -частицей и ядром трития обратно пропорционально их массам ($E_\alpha = 2,05$ Мэв, $E_t = 2,73$ Мэв). Ядра трития и α -частицы имеют определенные пробеги, в направлении детектора будут вылетать лишь частицы, образованные в тонком приповерхностном слое (пробег α -частиц несколько микрометров, пробег тритонов — несколько десятков микрометров). Из-за поглощения энергии частиц при движении их в веществе энергетический спектр вылетающих частиц будет непрерывным. Так как пробег α -частиц с $E_\alpha = 2,05$ Мэв на порядок меньше пробега тритонов с $E_t = 2,73$ Мэв, а вероятность образования обеих частиц в единице объема одина-

кова, то в спектре, регистрируемом внешним детектором, нельзя будет выделить α -частицы на подавляющем фоне тритонов. Для определения содержания лития можно регистрировать только тритоны, устанавливая порог дискриминации на уровне, соответствующем максимальной энергии α -частиц.

При облучении тепловыми нейтронами в единице объема образца, содержащего литий, в единицу времени образуется число тритонов, определяемое выражением

$$N_t = N_{\text{Li}} f \sigma \Phi, \quad (1)$$

где N_{Li} — концентрация лития, см^{-3} ; f — распространенность изотопа Li^6 в природной смеси; σ — сечение реакции $\text{Li}^6(n, \alpha)\text{H}^3$, см^2 ; Φ — поток тепловых нейтронов, $\text{нейтр}/\text{см}^2 \cdot \text{сек}$.

Практически толщина образца больше пробега тритонов с $E_t = 2,73$ Мэв (толстый образец), поэтому за пределы образца вылетит лишь часть частиц. Можно показать, что через единицу поверхности плоского толстого образца в телесный угол 2π в единицу времени вылетит число частиц

$$n_t = \frac{N_t}{4} (R - R_n),$$

где R — пробег частиц с $E_t = 2,73$ Мэв, см ; R_n — пробег частиц в веществе образца с энергией, равной уровню дискриминации.

Подставим значение N_t из (1):

$$n_t = \frac{N_{\text{Li}}}{4} f \sigma \Phi (R - R_n) \gamma. \quad (2)$$

В (2) введен коэффициент γ , учитывающий геометрию расположения образца и детектора. Кроме того, коэффициент γ зависит от площади образца и топографии пучка нейтронов. Формулой (2) трудно пользоваться при вычислении содержания лития, так как математически учесть геометрию расположения образца и детектора, принимая во внимание топографию пучка нейтронов, довольно трудно. Кроме того, произведение $\sigma \Phi$ можно вычислить лишь с большой неопределенностью. Чтобы избежать перечисленных трудностей, необходимо использовать образцовые препараты с содержанием лития, известным с достаточной точностью.

Пусть имеется образцовый препарат с концентрацией лития N_{Li_0} , тогда

$$n_{t_0} = \frac{N_{\text{Li}_0}}{4} f \sigma \Phi (R_0 - R_{n_0}) \gamma. \quad (3)$$

Коэффициент γ , вычисленный по формуле (3), подставим в (2) и получим

$$n_t = \frac{N_{Li} - n_{t_0} (R - R_n)}{N_{Li_0} (R_0 - R_{n_0})}.$$

Отсюда

$$N_{Li} = \frac{n_t (R_0 - R_{n_0})}{n_{t_0} (R - R_n)} N_{Li_0}, \quad (4)$$

где величины с индексом «нуль» относятся к образцовому препарату. Величины пробегов R для тритонов вычисляются по формуле

$$R(E) = 2,993 R_p \left(\frac{E}{2,993} \right) \approx 3 R_p \left(\frac{E}{3} \right),$$

где R_p — пробег протона. Зная средний атомный вес образца и образцового препарата, находим R_p по табличным данным (например, [6]). Формула (4) позволяет найти концентрацию лития в образце с точностью, ограниченной лишь статистической погрешностью определения величины n_t .

Экспериментальная часть. В качестве детектора тритонов мы использовали тонкий кристалл CsI(Tl), помещенный вместе с образцом в вакуумную камеру для исключения поглощения энергии тритонов в воздухе. Проводилась откачка камеры до давления $\sim 10^{-2}$ мм рт. ст. Внутри камеры предусмотрено устройство для смены образцов, позволяющее исследовать пять образцов без нарушения вакуума. Кристалл CsI(Tl) представлял собой диск диаметром 30 мм и толщиной 20–30 мм, оптически сочлененный с фотоумножителем ФЭУ-13. Плоскость образца наклонена к плоскости детектора под углом 30° .

Кроме тепловых нейтронов в пучке из горизонтального канала реактора ВВР-С, на котором производились измерения, присутствуют резонансные и быстрые нейтроны ($\sim 10\%$) и γ -кванты. Поэтому при регистрации тритонов будет наблюдаться значительный фон, обусловленный γ -излучением, β -частицами и протонами. Последние возникают при упругом рассеянии быстрых нейтронов на водороде, присутствующем в органических загрязнениях на поверхности образца и окружающих детектор деталях. Протоны возникают также в результате реакции (n, p), протекающей на алюминии, азоте и других элементах.

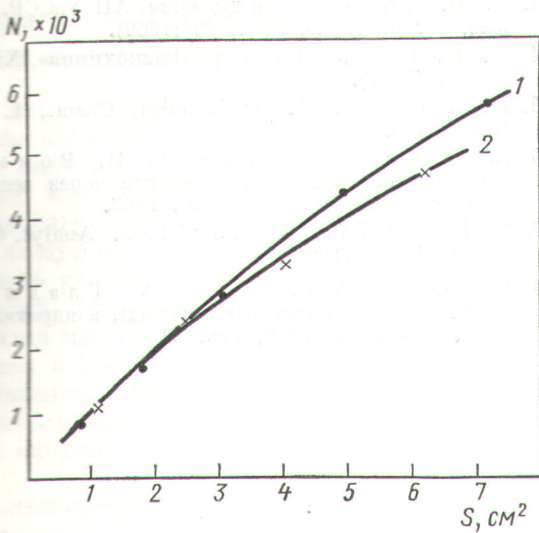
Малая толщина кристалла CsI(Tl) (20–30 мм) позволила исключить β — γ -фон и приблизить детектор к образцу на расстояние 38 мм, что увеличило геометрическую эффективность регистрации тритонов. Фон от прото-

нов снизили подбором расположения образца, детектора и защитных экранов.

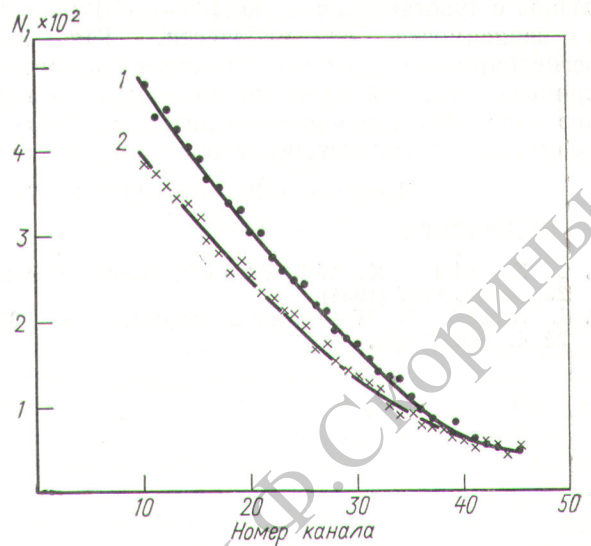
При малых содержаниях лития скорость счета фоновых импульсов может значительно превышать скорость счета тритонов; выделить спектр последних можно лишь вычитанием фона из смешанного спектра. Так как тритоны образуются только под действием тепловых нейтронов, смешанный спектр можно снимать, когда на образец падает полный пучок из канала, а спектр фона — когда в пучке отсутствуют тепловые нейтроны. Если в течение полного времени измерения записывать смешанный спектр, затем перекрыть пучок тепловых нейтронов и снимать фоновый спектр, то небольшие колебания мощности реактора вызовут значительную ошибку в определении числа тритонов. Для исключения подобной ошибки мы использовали метод модуляции пучка тепловых нейтронов. Сущность метода состоит в том, что пучок тепловых нейтронов разрезается прерывателем на импульсы равной длительности, остальная часть излучения из канала остается практически неизменной [7]. Механизм прерывателя через электронную схему связан с анализатором: при пропускании пучка тепловых нейтронов анализатор записывает смешанный спектр, при закрытом пучке из смешанного спектра вычитается спектр фона. Частоту модуляции всегда можно выбрать такой, чтобы за время одного периода колебаний можно было пренебречь изменениями мощности реактора.

В данной работе использовали анализатор АИ-100-1, память которого была разделена на две части по 50 каналов по принципу, предложенному в работе [8], с некоторыми изменениями. При открытом пучке тепловых нейтронов сигналы поступают только на основной вход анализатора и заносятся в первые 50 каналов. При закрытом пучке кроме сигнала на основной вход поступает импульс на схему разделения памяти и работают вторые 50 каналов. Частота модуляции 50 гц. При такой частоте можно пренебречь неравномерностью работы реактора.

Схема модуляции, предложенная в работе [7], обладает тем недостатком, что набор спектров продолжится и тогда, когда пучок тепловых нейтронов перекрыт не полностью. В этом случае часть полезных импульсов, равная отношению времени пересечения пучка границей кадмия к длительности полупериода модуляции, записывается в фоновый спектр. В работе [7], например, при ширине пучка 0,3 см эта



Р и с. 1. Зависимость счета от площади образцовых препаратов при постоянной концентрации лития и форме препаратов.



Р и с. 2. Смешанный спектр (1) и спектр фона (2) от кварцевой пластины.

часть импульсов составляет более 10% общего числа. В нашей схеме модуляции этот недостаток исключен, так как во время пересечения лучка границей кадмия счет импульсов не производится.

Образцовые препараты изготовили по следующей методике. Эпоксидную смолу ЭД-6 и глицерин с растворенным в нем $\text{LiCl} \cdot \text{H}_2\text{O}$ смешивали до получения однородной массы, затем добавляли отвердитель (полиэтиленполиамин). Смесь выливали на ровную стеклянную поверхность и выдерживали в течение нескольких суток при комнатной температуре. Вес такой смеси после отверждения не изменяется, что позволяет знать точное содержание лития. Из полученных пластин вырезались образцовые препараты различной формы и площади.

Результаты. Из вывода формулы (4) ясно, что образцовый препарат и исследуемый образец должны иметь одинаковую форму и площадь. Поэтому мы снимали зависимость числа зарегистрированных тритонов от площади образцовых препаратов при постоянной концентрации лития и форме препаратов. На рис. 1 кривая 1 представляет собой такую зависимость для круглых образцов, кривая 2 — для квадратных. Каждый образец облучался в потоке тепловых нейтронов $\Phi = 10^8 \text{ нейтр}/\text{см}^2 \cdot \text{сек}$ в течение 5 мин. Концентрация лития $N_{\text{Li}0} = 2,1 \cdot 10^{19} \text{ атом}/\text{см}^3$.

Мы определяли содержание лития в кварцевых пластинах. На рис. 2 представлены смешанный спектр и спектр фона, которые полу-

чены от кварцевой пластины, облученной в течение 12 мин. Вычисленная концентрация лития $N_{\text{Li}} = 1,43 \cdot 10^{19} \text{ атом}/\text{см}^3$ ($4,9 \cdot 10^{-3}$ вес. %).

Порог дискриминации устанавливали на уровне энергии тритонов 1,5 Мэв. Такой уровень соответствует энергии α -частиц, равной 2 Мэв, так как световыход кристалла CsI(Tl) при возбуждении α -частицами меньше, чем при возбуждении тритонами.

Содержание лития в некоторых образцах кварца

| Номер образца | Площадь, см ² | Концентрация, см ⁻³ | Содержание, вес. % | Ошибка, % |
|---------------|--------------------------|--------------------------------|---------------------|-----------|
| 1 | 1,43 | $0,92 \cdot 10^{19}$ | $4,0 \cdot 10^{-3}$ | 12 |
| 2 | 2,10 | $4,5 \cdot 10^{18}$ | $1,9 \cdot 10^{-3}$ | 20 |
| 3 | 3,54 | $7,1 \cdot 10^{18}$ | $3,1 \cdot 10^{-3}$ | 11 |
| 4 | 3,59 | $1,1 \cdot 10^{19}$ | $4,6 \cdot 10^{-3}$ | 7 |
| 5 | 3,35 | $0,98 \cdot 10^{19}$ | $4,2 \cdot 10^{-3}$ | 8 |

В таблице приводятся результаты определения содержания лития в зависимости от площади и концентрации. Ошибка измерений обусловлена в основном статистической погрешностью при определении величины n_t . Она уменьшается при увеличении времени измерения и площади образцов.

Данная методика позволяет определять содержание лития в твердых телах без разрушения об-

разцов с чувствительностью 10^{-4} — $5 \cdot 10^{-5}$ вес. % в зависимости от плотности. Так как регистрируемые тритоны образуются в тонком приповерхностном слое, то возможно послонное определение содержания лития, что полезно при изучении некоторых свойств твердых тел.

Поступила в Редакцию 14/XII 1970 г.

ЛИТЕРАТУРА

1. L. Kaplan, K. Wilzbach. *Analyt. Chem.*, 26, № 11, 1797 (1954).
2. S. Amil, J. Welwart. *Analyt. Chem.*, 35, № 4, 566 (1963).
3. Е. М. Лобанов и др. «Изв. АН УзССР. Серия физ.-матем. наук», № 6, 76 (1966).
4. И. Н. Плаксин и др. «Радиохимия», XI, вып. 4, 501 (1967).
5. H. Lukens. *J. Radioanalyt. Chem.*, 1, № 4, 349 (1968).
6. С. В. Стародубцев, А. Н. Романов. Прохождение заряженных частиц через вещество. Ташкент, Изд-во АН УзССР, 1962.
7. T. Isenhour, G. Morison. *Analyt. Chem.*, 38, № 2, 162 (1966).
8. Р. Б. Бегжанов, Д. А. Гладышев. В сб. «Электромагнитные переходы в ядрах». Ташкент, «Фанлар», 1966, стр. 214.

ВНИМАНИЮ ЧИТАТЕЛЕЙ

На складах и базах Союзкниги имеются следующие книги Атомиздата

Физика плазмы. Термоядерные исследования

Вопросы теории плазмы. Под ред. акад. М. А. Леонтовича. Вып. 5. 1967, 470 стр., 2 р. 06 коп.

Лонгмайр К. Л. Физика плазмы. Элементарный курс. Перев. с англ. 1966, стр., 1 р. 34 коп.

Подгорный И. М. Лекции по диагностике плазмы. 1968, 215 стр., 97 коп.

Смирнов Б. М. Атомные столкновения и элементарные процессы в плазме. 1968, 960 стр., 2 р. 64 коп.

Физика плазмы. Сб. статей МИФИ. 1967, 96 стр., 32 коп.

Физика плазмы. Сб. статей МИФИ. Вып. 2. 1969, 110 стр., 39 коп.

Заказы на перечисленные книги книготоргующие организации оформляют по форме № 4 и представляют в установленном порядке на Центральную оптовую базу Союзкниги (109109, Москва, 2-я Фрезерная улица, д. 14).

Индивидуальные покупатели могут приобрести эти книги в местных книжных магазинах, распространяющих литературу данной тематики.