

**ОПРЕДЕЛЕНИЕ ЭЛЕМЕНТНОГО СОСТАВА
СПЛАВА БОСПОРСКИХ СТАТЕРОВ III–IV ВВ. Н. Э.
ИЗ ФАНАГОРИЙСКОГО КЛАДА
МЕТОДОМ НЕЙТРОННОЙ СПЕКТРОСКОПИИ
НА ИМПУЛЬСНОМ ИСТОЧНИКЕ НЕЙТРОНОВ
ИРЕН ЛНФ ОИЯИ**

*П. В. Седышев^а, Н. В. Симбирцева^{а,б,1}, А. М. Ергашов^{а,б},
С. Т. Мажен^{а,б}, Ю. Д. Мареев^а, В. Н. Швецов^а, М. Г. Абрамзон^{в,г},
И. А. Сапрыкина^г*

^а Объединенный институт ядерных исследований, Дубна

^б Институт ядерной физики, Алма-Ата, Казахстан

^в Магнитогорский государственный технический университет им. Г. И. Носова,
Магнитогорск, Россия

^г Институт археологии РАН, Москва

Метод нейтронного резонансного анализа в настоящее время разрабатывается в Лаборатории нейтронной физики им. И. М. Франка с целью определения элементного состава образцов. Метод основан на регистрации нейтронных резонансов при радиационном захвате и измерении выхода продуктов реакции в этих резонансах. Чтобы проверить возможности этого метода, такие исследования были проведены в сотрудничестве с Институтом археологии РАН на импульсном источнике нейтронов ИРЕН ЛНФ для античных монет из Фанагорийского клада. В качестве детектора γ -квантов использовался цилиндрический многосекционный жидкостный сцинтилляционный детектор.

The method of Neutron Resonance Capture Analysis (NRCA) is currently being developed at the Frank Laboratory of Neutron Physics (FLNP) for the purpose of determination of the element composition of samples. The method is based on registration of neutron resonances in radiative capture and measurement of the yield of reaction products in these resonances. To test the capabilities of this method, such investigations were carried out in collaboration with the Institute of Archaeology of RAS at the pulsed neutron source IREN of FLNP for the ancient coins from Phanagoria's treasure. A cylindrical multi-sectional liquid scintillator detector was used as a detector of γ quanta.

PACS: 29.30.Hs

¹E-mail: simbirtseva@jinr.ru

ВВЕДЕНИЕ

В Лаборатории нейтронной физики им. И. М. Франка ОИЯИ все большее применение находит нейтронный резонансный анализ элементного состава различных образцов [1–3] как в γ -канале (Neutron Resonance Capture Analysis — NRCA), так и в пропускании (Neutron Resonance Transmission Analysis — NRTA). Метод и основан на идентификации элементов по энергиям нейтронных резонансов и в реакции радиационного захвата (или на кривой пропускания) и определении содержания элементов по регистрируемому выходу γ -квантов в этих резонансах и (по площади резонанса на кривой пропускания). Параметры низколежащих и резонансов определены практически для всех стабильных изотопов [4, 5], поэтому в большинстве случаев имеется возможность решить обратную задачу — имея экспериментальные данные и зная параметры резонансов, определить количество ядер изотопа/элемента, содержащегося в исследуемом образце. Для реализации метода необходим импульсный источник резонансных нейтронов с хорошим временным разрешением. Спектрометрия нейтронов осуществляется по времени пролета. Главные достоинства анализа по нейтронным резонансам — неразрушающий характер и практическое отсутствие наведенной активности, что делает его перспективным для исследований предметов культурного наследия и археологических артефактов.

Основоположником направления исследований предметов культурного наследия методами нейтронной спектрометрии, по-видимому, следует считать Ганса Постму (Hans Postma) из Делфтского технического университета (Делфт, Нидерланды). Под его руководством на импульсном источнике нейтронов ГЕЛИНА (GELINA) Института эталонных материалов и измерений Объединенного исследовательского центра (Гел, Бельгия) были выполнены эксперименты в рамках ряда научных программ, посвященных этому направлению (см., например, обзор [6] и ссылки в нем). Такого рода измерения проводятся также на импульсном источнике нейтронов и мюонов ISIS в Великобритании [7] и импульсном источнике нейтронов J-PARC в Японии [8]. В ЛНФ ОИЯИ исследования проводятся на импульсном источнике резонансных нейтронов ИРЕН [9, 10].

Для реализации нейтронного резонансного анализа применяется та же методика измерений и обработки экспериментальных данных, что и для определения резонансных параметров. Однако здесь есть ряд особенностей, связанных с исследованием образцов неправильной формы и неоднородного состава, что характерно для археологических объектов.

В 2016 г. в ЛНФ ОИЯИ были переданы для исследований 10 монет из крупнейшего клада боспорских статеров III–IV вв. н. э. [11]. Особую важность представляет изучение химического состава статеров, что позволяет проследить инфляцию на Боспоре. Ранее химический состав монет исследовался на РФА-спектрометре в лаборатории научно-исследовательского центра государственного музея-заповедника «Фанагория» [12]. Для оценки возможностей проведения подобных исследований методами нейтронной резонансной спектрометрии на установке ИРЕН ЛНФ и отработки методики измерений, а также обработки экспериментальных данных были проведены эксперименты, описанные ниже.

ОБЪЕКТ ИССЛЕДОВАНИЯ

Осенью 2011 г. во время работ фанагорийской археологической экспедиции ИА РАН на восточном некрополе Фанагории был открыт крупнейший клад позднебоспорских статов. Полнота состава этого огромного комплекса дает новые возможности для детального изучения монетного дела Боспора второй половины III – начала IV в. н. э. Соккрытие клада с большой вероятностью связано с историческим контекстом эпохи — обстановкой нестабильности на Боспоре, вызванной вторжениями коалиций племен Меотиды. Основную часть клада (более двух третей) образуют билонные статары времен правления Рескупорида V (242/243–276/277 гг.), которые в условиях денежного кризиса и деградации монеты, вызванной дефицитом серебра, были

Таблица 1. Параметры исследуемых монет

№ по каталогу	№ по описи	Годы эмиссий, н. э.	Масса, г	Площадь, мм ²
2	Ф-11-206	242/243	7,600	266,0
183	Ф-11-387	249/250	7,350	293,0
271	Ф-11-475	250/251	7,401	254,0
355	Ф-11-559	251/252	7,527	253,5
482	Ф-11-686	252/253	7,418	251,5
709	Ф-11-913	262/263	7,350	265,0
732	Ф-11-936	262/263	7,492	273,5
860	Ф-11-1064	263/264	7,099	296,0
961	Ф-11-1165	263/264	7,165	279,0
1025	Ф-11-1229	264/265	6,631	263,5



Рис. 1. Внешний вид статов

выведены из обращения в первую очередь. Как известно, поиск государством финансов для борьбы с варварами сопровождался инфляционными процессами в боспорской экономике — чрезмерно обильными или, напротив, очень малыми эмиссиями статеров, а также «порчей» монеты из-за дефицита металла, в частности, серебра. Правление Рескупорида V и последующих царей приходится на один из самых сложных периодов истории Боспора, связанный с активностью в регионе во второй половине III – первой половине IV в. н. э. коалиций германских, сармато-аланских и других племен и их вторжениями в римские провинции. Девяностолетний отрезок боспорской истории с 251/252 по 341/342 г. н. э. насыщен бурными событиями, сопровождавшимися массовой тезаврацией, несколькими перерывами в монетной чеканке, а затем и полным ее прекращением. Нумизматические источники дают важнейшую информацию о политической ситуации на Боспоре, а также уровне экономики той эпохи.

Переданные статеры относятся ко времени правления царя Рескупорида V. Параметры исследуемых образцов представлены в табл. 1, внешний вид показан на рис. 1, а также в работе [11].

ЭКСПЕРИМЕНТ

Исследования элементного состава статеров проводились методом нейтронного резонансного анализа в радиационном захвате (NRCA). Образцы облучались нейтронами от импульсного источника резонансных нейтронов ИРЕН, и регистрировался времяпролетный спектр реакций (n, γ) на материале образцов. Основные положения методики измерений изложены в работе [1]. В это время на установке ИРЕН шли работы по модернизации, в связи с чем имел место дефицит пучкового времени. С учетом этого факта и, как было сказано выше, для оценки возможностей проведения таких исследований было решено провести измерения со всеми монетами сразу. Монеты были помещены в алюминиевый контейнер с толщиной стенок 1 мм и установлены в канал детектора γ -квантов. Таким образом, полный вес образцов составил 73,033 г, площадь 26,95 см². Измерения проводились на пролетной базе 58,6 м установки ИРЕН.

Установка ИРЕН представляет собой линейный ускоритель электронов и неразмножающую нейтронопроизводящую мишень из сплава ВНЖ, окруженную замедлителем (водой) (см. [1, 9, 10]). Параметры работы установки при проведении измерений были следующими: средняя энергия электронов ~ 40 МэВ, длительность электронного импульса — 100 нс, значение тока в импульсе $\sim 1,5$ А, частота повторений импульсов 25 Гц, интегральный выход нейтронов $\sim 3 \cdot 10^{11}$ с⁻¹.

Для регистрации γ -квантов использовался многосекционный жидкостный сцинтилляционный детектор, созданный в ЛНФ ОИЯИ. Детектор состоит из 6 независимых секций, образующих вместе цилиндр со сквозным каналом диаметром 28 см вдоль пучка нейтронов. Длина детектора 60 см, общее количество сцинтиллятора 210 л. Каждая секция с двух торцов просматривается парой ФЭУ. Регистрирующая аппаратура позволяет выделять события с различными кратностями совпадений импульсов сработавших секций или работать в режиме одиночных импульсов. Для большинства ядер энергия связи нейтрона лежит в диапазоне 5–10 МэВ, и возбуждение после захвата снимается каскадом из нескольких γ -квантов, поэтому для улучшения отношения эффект/фон целесообразно использовать режим кратности совпадений.

Более детально о детекторе и регистрирующей аппаратуре см. в [1, 13]. Измерения проводились в режиме кратности $m \geq 2$, т. е. событие регистрировалось, если одновременно срабатывали две или более секций.

Для получения времяпролетных спектров применялся 8-входовый многостоповый время-цифровой 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

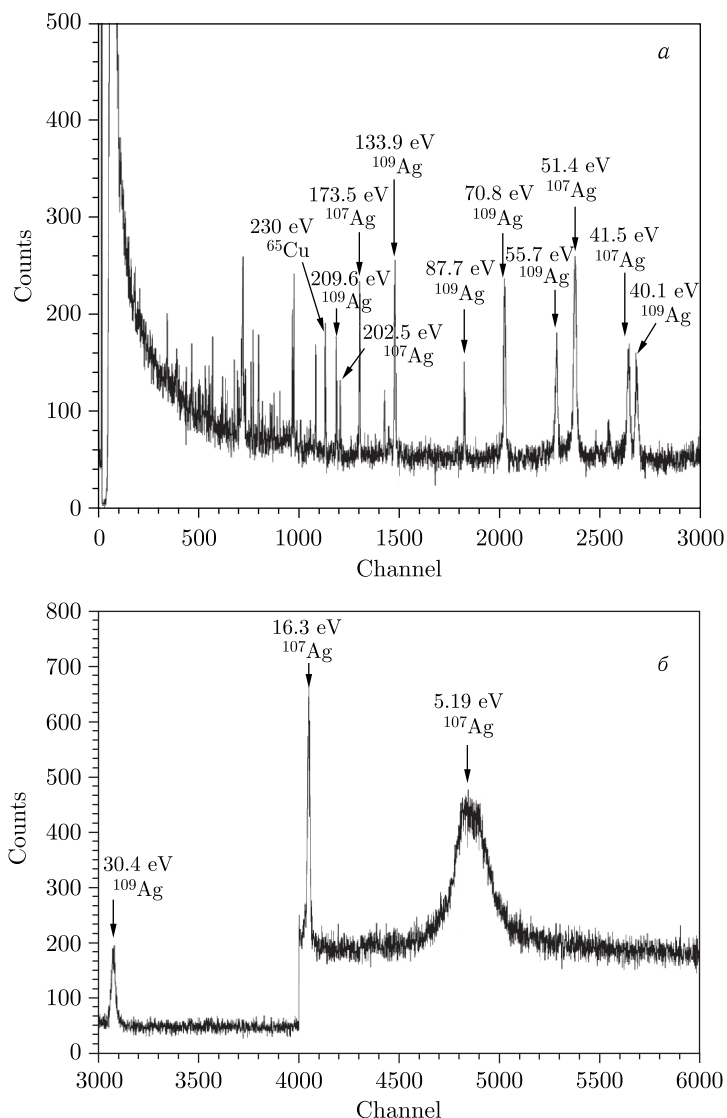


Рис. 2. Участок времяпролетного спектра радиационного захвата нейтронов, полученный в измерениях с монетами. Цена деления временного канала: а) 250 нс; б) до 4000 канала — 250 нс, с 4000 по 6000 канал — 1 мкс

детекторных входов — сигнал после схемы совпадений детектора. Управление ВЦП и набор данных в память компьютера осуществляются через порт USB.

В процессе измерений мощность нейтронного источника постоянно контролировалась. В качестве монитора использовался нейтронный счетчик СНМ-17. Сформированный сигнал от счетчика также подавался на один из детекторных входов ВЦП.

Измерение с монетами длилось 13 ч. На рис. 2, а, б приведены времяпролетные спектры, полученные в этом измерении.

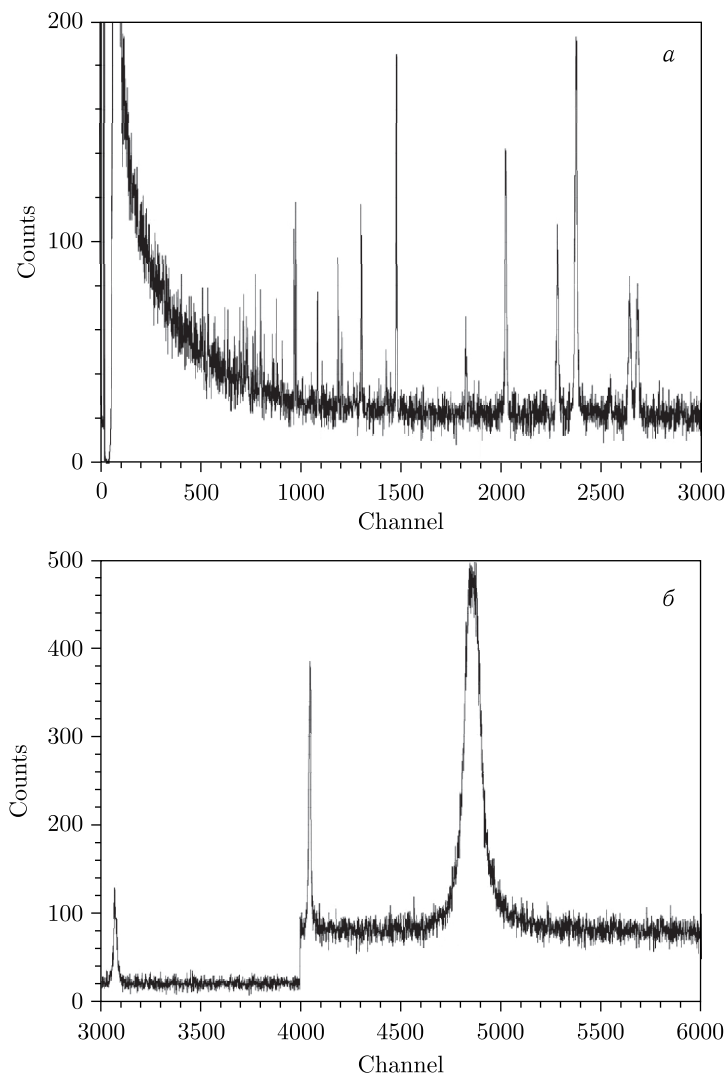


Рис. 3. Часть времяпролетного спектра, полученного в измерениях со стандартом серебра. Цена деления временного канала: а) 250 нс; б) до 4000 канала — 250 нс, с 4000 по 6000 канал — 1 мкс

Энергии резонансов определялись по формуле

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

где L — пролетная база (м); t — время пролета нейтрона (мкс); E — энергия нейтрона (эВ).

На рис. 2, а, б стрелками указаны резонансы, которые далее были использованы при обработке. Кроме резонансов серебра и меди, резонансов других элементов за это время набора не наблюдалось.

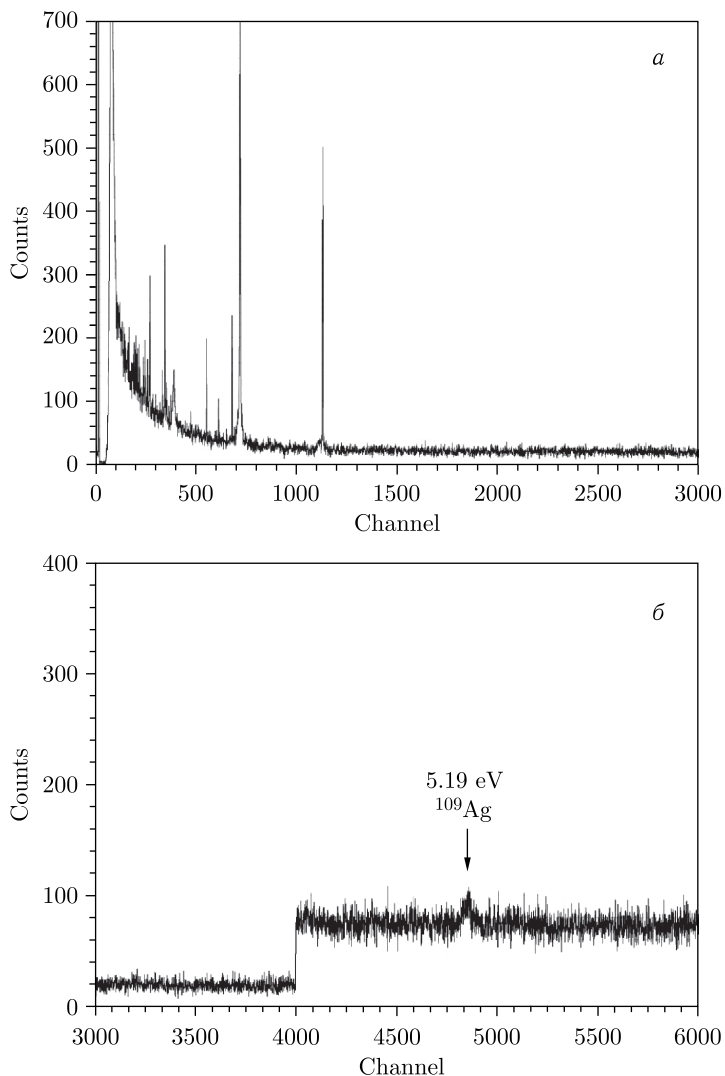


Рис. 4. Часть времяпролетного спектра, полученного в измерениях со стандартом меди. Цена деления временного канала: а) 250 нс; б) до 4000 канала — 250 нс, с 4000 по 6000 канал — 1 мкс. О присутствии резонанса серебра см. в тексте

Дополнительно были выполнены измерения со стандартными образцами серебра и меди. Эти данные использовались при обработке для того, чтобы избежать определения абсолютных значений эффективности детектора и потока нейтронов. Стандартный образец серебра — серебряная фольга толщиной 0,1 мм, площадью 38,46 см² и массой 3,55 г. Время измерений — 8 ч. Времяпролетный спектр, полученный в измерениях с серебряным стандартом, приведен на рис. 3, *а, б*. Стандартный образец меди — медная пластина из меди марки М1, толщиной 1,5 мм, площадью 162,8 см² и массой 216 г. Время измерений — 6 ч. Времяпролетный спектр приведен на рис. 4, *а, б*.

У меди отсутствуют резонансы ниже 230 эВ (канал 1134), однако на времяпролетном спектре наблюдается резонанс серебра 5,19 эВ (рис. 4, *б*). Согласно ГОСТ 859-214 «Медь. Марки» медь М1 может содержать серебро до 0,003 % по весу. Таким образом, в медном стандарте может содержаться около 6,5 мг серебра. Это не препятствует использованию пластины для определения содержания меди в исследуемых образцах, так как резонанс серебра 5,19 эВ самый сильный, а плотность нейтронного потока убывает как $1/E^{0,96}$ с ростом энергии нейтронов. Поэтому выход от других резонансов серебра не превышает флуктуаций фона.

ОБРАБОТКА ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫХ ДАННЫХ

Обработка экспериментальных данных и анализ происходили в два этапа. Сначала оценивалось примерное содержание элементов, затем учитывались наиболее существенные поправки.

Предварительная обработка. Для обработки были выбраны 12 резонансов серебра в диапазоне 5,19–209,6 эВ и 1 резонанс меди ⁶⁵Si 230 эВ. Другой сильный резонанс меди ⁶³Si 579 эВ (примерно 722-й канал на рис. 2, *а* и 4, *а*) слишком сильно перекрывают расположенные близко резонансы серебра, и он не может быть использован для обработки.

При обработке использовался так называемый метод площадей, применяемый в нейтронной спектроскопии для определения параметров нейтронных резонансов (см., например, [14–16]). В этом случае параметры извлекаются не при подгонке к форме резонанса (метод форм), а из полного количества отсчетов в резонансе. Метод имеет то преимущество, что позволяет не учитывать форму нейтронного импульса и функцию временного разрешения спектрометра. С другой стороны, есть и некоторый недостаток. Метод хорошо работает для изолированных резонансов, когда расстояние между анализируемыми резонансами много больше ширины резонансов.

В резонансах определялось количество отсчетов с вычтенным фоном, который, в свою очередь, определялся по отсчетам слева и справа от резонанса (или от группы резонансов) и аппроксимировался константой либо прямой. Это вносило в обработку субъективную, но случайную погрешность. По нашим оценкам, при набранной статистике и соотношении эффект/фон это составляло в среднем 5 %, что учитывалось в расчетах.

Для тонких образцов, с $n\sigma \ll 1$, где n — количество ядер изотопа на единицу площади образца, σ — полное сечение взаимодействия нейтрона с ядром этого изотопа, выход продуктов реакции прямо пропорционален облучаемой массе образца. Тогда

масса элемента в исследуемом образце определяется как

$$m_x = m_s \frac{\sum N_x M_s}{\sum N_s M_x}, \tag{2}$$

где $m_{x,s}$ — масса элемента в исследуемом и стандартном образце; $\sum N_{x,s}$ — количество отсчетов в резонансе для исследуемого и стандартного образца; $M_{x,s}$ — показания монитора нейтронного потока в соответствующих измерениях.

Результаты такой обработки для серебра показаны на рис. 5. Погрешности каждой точки обусловлены статистикой и вычитанием фона. Средневзвешенное значение составило $(5,93 \pm 0,35)$ г, или 8,12 % по весу.

Однако для многих резонансов $n\sigma$ значительно больше 1, поэтому необходимо учитывать явление самоэкранировки резонансов.

Предварительная обработка была проведена методом, применяемым в нейтронной спектроскопии для определения резонансных параметров при работе с «хорошими» образцами [14–16], т. е. правильной формы, однородными, достаточно тонкими, чтобы эффектами от рассеяния нейтронов на ядрах образца и взаимодействия испускаемых γ -квантов с веществом образца можно было пренебречь.

Тогда сумма отсчетов детектора по резонансу выражается формулой

$$\sum N = f(E_0) S t \varepsilon_\gamma \frac{\Gamma_\gamma}{\Gamma} A, \tag{3}$$

где $f(E_0)$ — плотность нейтронного потока при резонансной энергии E_0 ; S — площадь образца; t — время измерения; ε_γ — эффективность регистрации радиационного захвата детектором; Γ_γ, Γ — радиационная и полная ширины резонанса соответственно. Величина A — площадь резонанса на кривой пропускания — определяется как

$$A = \int_{E_1}^{E_2} [1 - \exp(-n\sigma(E))] dE. \tag{4}$$

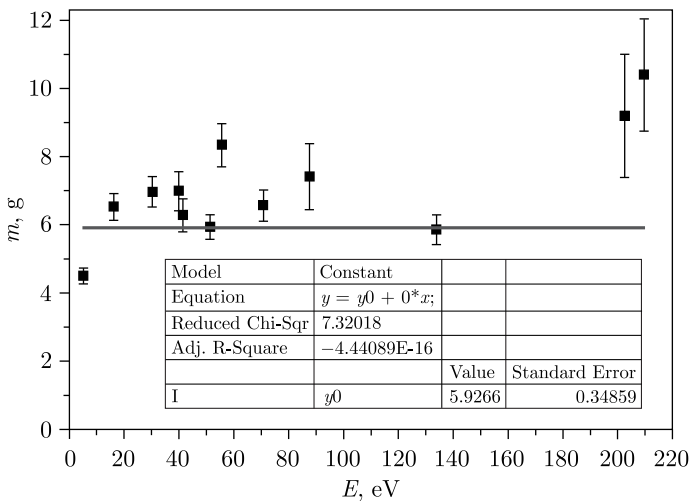


Рис. 5. Содержание серебра в исследуемых монетах при обработке по формуле (2). На оси абсцисс указаны энергии резонансов

Здесь $\sigma(E)$ — полное сечение взаимодействия нейтронов с ядрами данного изотопа в резонансе. Как видно из (4), концентрацию изотопа можно извлечь из экспериментально определенной величины A . Полное сечение взаимодействия нейтронов с ядрами вблизи резонанса описывается формулой Брейта–Вигнера. При этом необходимо учитывать тепловое движение ядер мишени, которое приводит к доплеровскому уширению резонанса. Учет доплеровского уширения и вычисление интеграла (4) производится численно. Для удобства расчетов используется соотношение

$$\sigma(E) = \sigma_0 \Psi(\beta, x), \quad (5)$$

где

$$\sigma_0 = 4\pi\lambda^2 g \frac{\Gamma_n}{\Gamma} \quad (6)$$

— полное сечение взаимодействия при резонансной энергии; $\Psi(\beta, x)$ — зависящая от энергии часть формулы Брейта–Вигнера, усредненная по максвелловскому распределению;

$$\Psi(\beta, x) = \frac{1}{\beta\sqrt{\pi}} \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{\exp\left[-\frac{(x-y)^2}{\beta^2}\right]}{1+y^2} dy, \quad (7)$$

$$x = \frac{2(E - E_0)}{\Gamma}, \quad y = \frac{2(E' - E_0)}{\Gamma}, \quad \beta = \frac{2\Delta}{\Gamma}, \quad (8)$$

$$\Delta = 2\sqrt{kTE_0 \frac{m}{M}} \quad (9)$$

— доплеровское уширение, где k — постоянная Больцмана, а m/M — отношение масс нейтрона и компаунд-ядра. T — вообще говоря, эффективная температура, но для большинства материалов можно брать значение температуры окружающей среды [6, 17].

С учетом (5)–(9) формулу (4) можно выразить через безразмерные величины:

$$\frac{A(n\sigma_0; \beta)}{\Delta} = \frac{1}{\beta} \int_{x_1}^{x_2} [1 - \exp(-n\sigma_0 \Psi(\beta, x))] dx. \quad (10)$$

Как видно из (10), для каждого определенного соотношения (β) полной ширины резонанса и доплеровского уширения существует своя зависимость A от $n\sigma_0\Gamma/\Delta$. Пример приведен на рис. 6.

Величина площади резонанса на кривой пропускания для исследуемого образца определяется по экспериментальным данным и вычисленной величине A_s для стандартного образца как

$$A_x = \frac{\sum N_x M_s S_s}{\sum N_s M_x S_x} A_s. \quad (11)$$

При анализе экспериментальных данных мы использовали программу, написанную по алгоритму, приведенному в [16]. Определение концентрации ядер исследуемого элемента по значению A_x производилось также с использованием этой программы

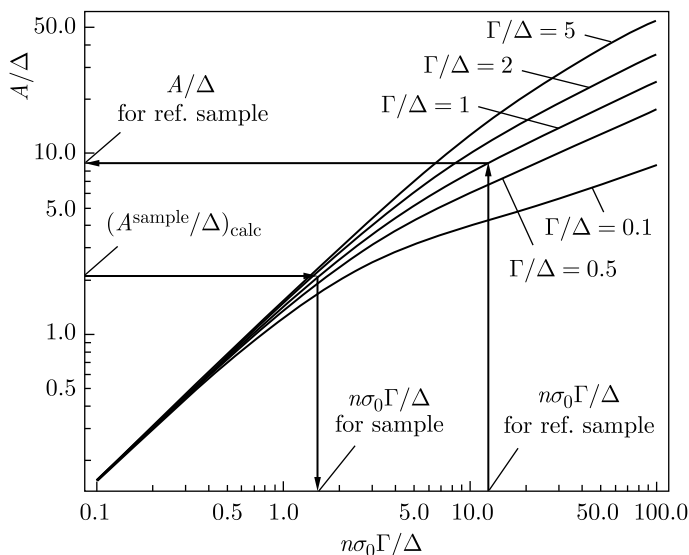
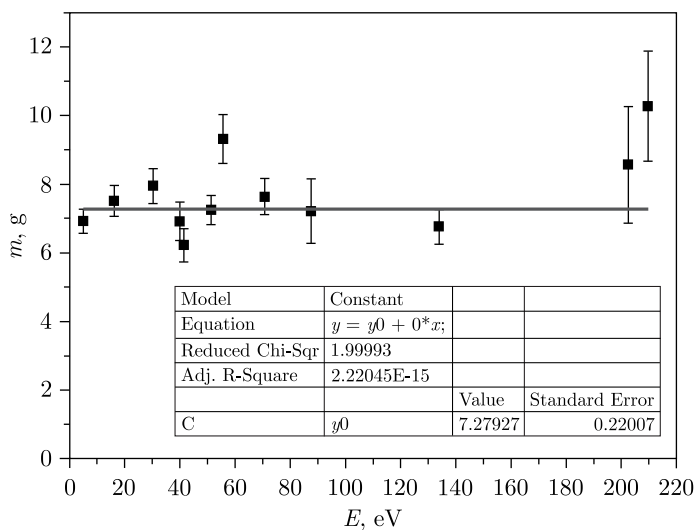
Рис. 6. Графики зависимости площади A/Δ от параметров $n\sigma_0\Gamma/\Delta$ и Γ/Δ 

Рис. 7. Содержание серебра в исследуемых монетах, полученное при обработке с учетом самоэкранировки резонансов

методом последовательных приближений с точностью не хуже 1%. Результаты приведены на рис. 7. Полученное средневзвешенное значение: $(7,28 \pm 0,22)$ г, или 9,90% по весу. Учет самоэкранировки резонансов привел к корректировке результата на 22% в сторону увеличения.

Как было сказано выше, содержание меди в образцах определялось только по одному резонансу и составило $(62,0 \pm 3,1)$ г, или 84,9% по весу.

Учет поправок. Оцененный описанным выше способом суммарный вес элементов в образце составляет $(69,3 \pm 3,1)$ г. В принципе, в пределах экспериментальной погрешности он совпадает с измеренным весом монет 73,033 г. Однако суммарная экспериментальная погрешность практически полностью определяется погрешностью содержания меди. Эта неопределенность в 3 г может скрывать в себе и некую систематическую погрешность.

Расчеты, сделанные выше, применялись ранее при изучении резонансов и предполагали использование в эксперименте «хороших» образцов: правильной формы, однородных, достаточно тонких, не содержащих существенных примесей других элементов. В нашем же случае образцы достаточно толстые. По нашим оценкам, основные факторы, которые могут влиять на результат, связаны со взаимодействием γ -квантов с веществом (самопоглощение) и взаимодействием нейтронов с ядрами образца.

Оценка взаимодействия γ -квантов с веществом образца была сделана с использованием пакета программ GEANT. Сравнивались спектры γ -квантов, образующихся в образце при радиационном захвате нейтронов и покинувших образец. Порог регистрации предполагался 350 кэВ. Полученные поправки приведены в табл. 2. Как видно из таблицы, для серебра поправка доходит до 8%. Так как зависимость A от $n\sigma$ нелинейная (см. рис. 6), результат по содержанию элементов увеличится на большее значение.

Таблица 2. Поправки на самопоглощение γ -квантов в образцах

Образец	^{65}Cu	^{107}Ag	^{109}Ag
Исследуемый образец	1,046	1,055	1,076
Стандарт	1,039	1,005	1,005

Взаимодействие нейтронов с ядрами меди (в основном это потенциальное рассеяние) само по себе ослабляет нейтронный поток на 15%, что, несомненно, следует учитывать.

Из работ [12, 18] было известно, что статоры времен правления Рескупорида V характеризуются повышенным обогащением серебра на поверхностях монет. Поэтому для расчета поправок были выбраны две модели (два предельных случая) — случай равномерного распределения элементов по объему монет и случай, когда все серебро находится на поверхности монет.

При расчетах уже использовалась не величина A , а площадь резонанса, характеризующая выход γ -квантов I . Тогда сумма отсчетов под резонансной кривой выражается как

$$\sum N = f(E_0)St\varepsilon_\gamma I, \quad (12)$$

где

$$I = \int_{E_1}^{E_2} \frac{n_{\text{Ag}i}\sigma_{\text{Ag}\gamma_i}(E)}{n_{\text{Ag}i}\sigma_{\text{Ag}t_i}(E) + n_{\text{Ag}}\sigma_{\text{Ag}t} + n_{\text{Cu}}\sigma_{\text{Cu}t}} \times \\ \times [1 - \exp(-n_{\text{Ag}i}\sigma_{\text{Ag}t_i}(E) - n_{\text{Ag}}\sigma_{\text{Ag}t} - n_{\text{Cu}}\sigma_{\text{Cu}t})] dE \quad (13)$$

для первой модели и

$$I = \int \frac{n_{\text{Ag}i} \sigma_{\text{Ag}\gamma_i}(E)}{n_{\text{Ag}i} \sigma_{\text{Ag}t_i}(E) + n_{\text{Ag}} \sigma_{\text{Ag}t}} [1 - \exp(-0,5n_{\text{Ag}i} \sigma_{\text{Ag}t_i}(E) - 0,5n_{\text{Ag}} \sigma_{\text{Ag}t})] \times \\ \times [1 + \exp(-0,5n_{\text{Ag}i} \sigma_{\text{Ag}t_i}(E) - 0,5n_{\text{Ag}} \sigma_{\text{Ag}t} - n_{\text{Cu}} \sigma_{\text{Cu}t})] dE \quad (14)$$

для второй модели. Здесь $n_{\text{Ag}i}$ — концентрация изотопа серебра i , отвечающего за данный резонанс; $\sigma_{\text{Ag}\gamma_i}(E)$ — резонансный вклад реакции (n, γ) с учетом доплеровского уширения для данного изотопа серебра; $\sigma_{\text{Ag}t_i}(E)$ — полное резонансное сечение с учетом доплеровского уширения для данного изотопа; n_{Ag} — полная концентрация серебра; n_{Cu} — полная концентрация меди; $\sigma_{\text{Ag}t}$ — полное сечение взаимодействия нейтронов с ядрами серебра вблизи i -го резонанса; $\sigma_{\text{Cu}t}$ — полное сечение взаимодействия нейтронов с ядрами меди вблизи резонанса. Полное взаимодействие вне резонансов обусловлено в основном потенциальным рассеянием и практически не меняется в диапазоне 1 эВ–1 кэВ. Данные для $\sigma_{\text{Ag}t}$ и $\sigma_{\text{Cu}t}$ взяты из библиотеки ENDF/VIII.0 [19].

Для стандартных образцов выражение для I аналогично (13), но без членов, связанных с другим элементом. Связь площадей резонансов исследуемого и стандартного образцов осуществляется так же, как в (11),

$$I_x = \frac{k_x \sum N_x M_x S_x}{k_s \sum N_s M_s S_s} I_s, \quad (15)$$

где $k_{x,s}$ — поправка на самопоглощение γ -квантов для исследуемого образца и стандарта соответственно.

Расчеты $I_{x,s}$ и концентраций изотопов производились также с помощью упомянутой выше программы.

Результаты расчетов по обеим моделям отличались друг от друга только для сильных резонансов, но не более чем на 4%. В сильных резонансах также несколько различалась их форма (рис. 8 и 9).

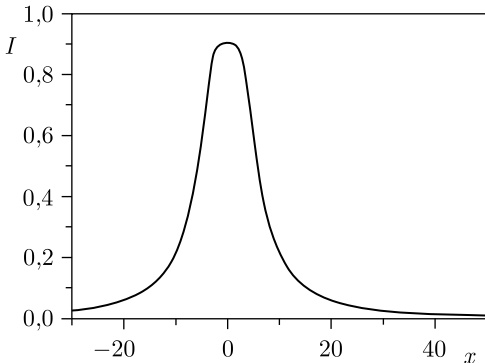


Рис. 8. Форма резонанса 5,19 эВ, рассчитанная по первой модели; x определяется формулой (8). Границы те же, что брались при обработке времяпролетных спектров

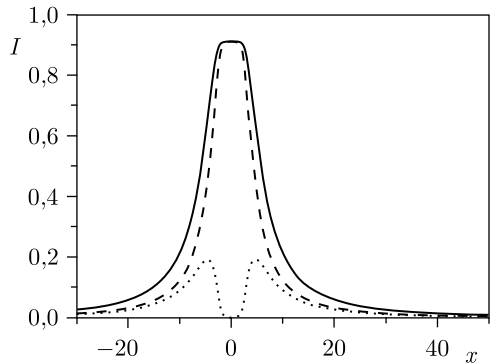


Рис. 9. То же, что и на рис. 8, но рассчитано по второй модели. Показаны вклады в резонанс с передней поверхности к пучку (штриховая кривая) и задней (пунктирная)

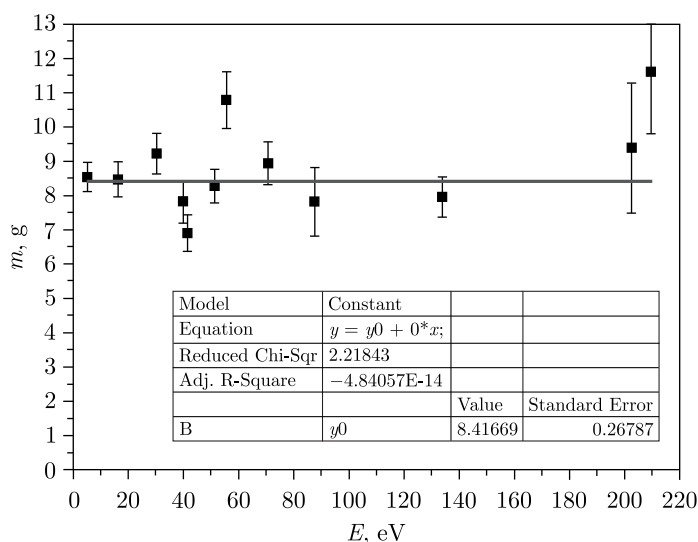


Рис. 10. Содержание серебра в исследуемых монетах, полученное при обработке с учетом поправок

Результаты для серебра с учетом поправок приведены на рис. 10. Для окончательного результата были взяты средние значения.

Содержание серебра в монетах составило $(8,42 \pm 0,27)$ г. Учет поправок привел к увеличению результата почти на 16%. Для меди получено значение $(63,4 \pm 3,2)$ г. То есть результат увеличился всего на 1%. Это связано с тем, что толщины монет, состоящих в основном из меди, и медного стандартного образца близки. Суммарный вес материала $(71,8 \pm 3,2)$ г, что в пределах экспериментальной погрешности совпадает с данными по взвешиванию 73,033 г.

Применяя данный подход, нужно учитывать, что изменение содержания элементов в образце приводит к изменению значений коэффициентов самопоглощения и значений I в (13), (14). Так как в данном случае серебра в образцах почти на порядок меньше, чем меди, вариации в содержании серебра в 16% на конечный результат для меди практически не влияют.

Проверка влияния неоднородности образцов. Таким образом, полученное нами содержание элементов в монетах составляет для серебра 11,5% по весу и для меди 86,8% по весу. В работах сотрудников Института археологии элементный состав этих статеров исследовался методом РФА. Содержание серебра на поверхности монет в среднем составило 24,23% (вычислено по данным из [12]). В той же работе установлено, что содержание серебра в монетах убывает от поверхности в глубину. Это же подтвердили и нейтронографические исследования на ИБР-2 [18]. В работе [18] была реконструирована техника изготовления монет. Заготовки из сплава меди и серебра предварительно протравливались. Медь с поверхности и из пор заготовок выпадала в раствор, а серебро оставалось. Затем монеты печатались. Таким образом, на поверхности оказывалось повышенное содержание серебра. Тем не менее, различие результатов в два раза достаточно серьезное и требует дополнительного исследования.

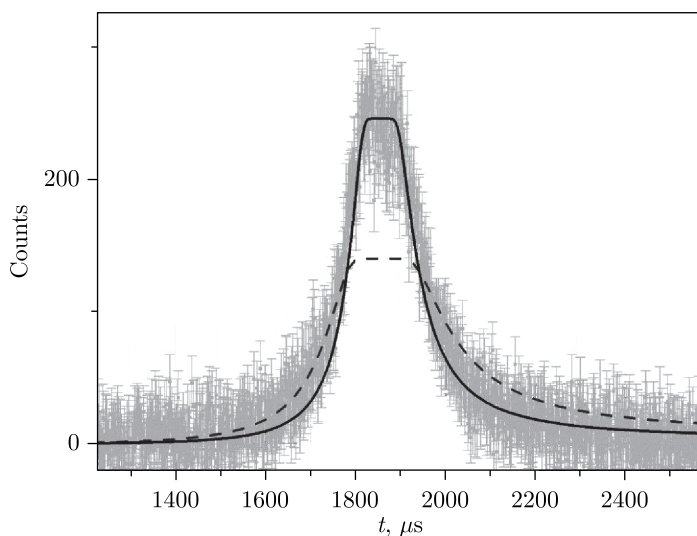


Рис. 11. Серая кривая — экспериментальные данные; сплошная линия — кривая, соответствующая полученному значению n_{Ag} в образце; штриховая — кривая, соответствующая удвоенному значению n_{Ag} и уменьшенной площади

Основной фактор, который может сказаться на результате по серебру, — неоднородность образцов. Во-первых, сами предоставленные статеры имеют широкий разброс содержания серебра, по крайней мере, на поверхности от 9,3 до 56,3%. Во-вторых, внутри монет серебро может быть распределено в виде крупных вкраплений. Тогда распределение серебра в образце характеризуется эффективной толщиной и, в ряде случаев, эффективной площадью, которая меньше площади монет. При использовании в расчетах выражений (11), (15) получается заниженное значение A_x и I_x , что приводит к заниженному значению n . Далее, при определении полной массы, $m \sim nS$, разница компенсируется, но не полностью из-за нелинейной зависимости $A(n)$ (см. рис. 6). Эти рассуждения верны и для меди, но влияют на результат меньше, максимум на 12%, если допустить, что серебра содержится действительно в два раза больше, чем определено нами.

Чтобы исключить возможность получения ошибочного результата, связанного с неоднородностью объекта, были проведены расчеты, позволяющие проверить возможность получения одинакового выхода в резонансе при разном количестве ядер и разной площади образца. Нами также был рассмотрен предельный случай. Количество ядер, полученное для серебра, было увеличено в два раза. Подбором было найдено значение площади образца, при которой выход в резонансе совпадал с экспериментальным. С использованием полученных значений построена кривая для описания экспериментальных данных. Результат для резонанса 5,19 эВ ^{109}Ag представлен на рис. 11.

Как видно из рис. 11, кривая, построенная при удвоенном значении n_{Ag} и уменьшенной площади образца в 0,57 раза, не описывает экспериментальных данных. Это дает основание полагать, что полученный нами результат является верным.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Нейтронный резонансный анализ был применен для исследования содержания серебра и меди в боспорских статерах времен правления царя Рескупорида V. Была сделана обработка для 12 резонансов серебра и 1 резонанса меди. Учет поправок, таких как взаимодействие γ -квантов с веществом (самопоглощение) и упругое рассеяние нейтронов на ядрах образцов, привел к корректировке результата на 24%. После обработки с учетом всех поправок содержание серебра в монетах составило $(8,42 \pm 0,27)$ г, или 11,53% по весу. Содержание меди оценивалось только по одному резонансу, и получен результат $(63,4 \pm 3,2)$ г, или 86,8% по весу. Полный вес элементов, определенных нами в монетах, составляет $(71,8 \pm 3,2)$ г, что в пределах экспериментальной погрешности совпадает со значением, определенным взвешиванием 73,033 г. Мы считаем, что основная систематическая ошибка проистекает из расчета поправок. Поправки рассчитывались по достаточно грубым моделям; данные по спектрам, применяемые в пакете GEANT, также недостаточно хорошо определены. Поскольку поправки привели к увеличению результата для серебра на 24%, мы решили оценить нашу систематическую погрешность в половину этой величины, т. е. 12%. Для меди это составляет 0,5%.

Авторы выражают благодарность персоналу установки ИРЕН ЛНФ, начальнику научно-экспериментального отдела ускорительных систем ЛФВЭ А. П. Сумбаеву, начальнику сектора №5 научно-экспериментального отдела инъекции и кольца нуклотрона ЛФВЭ В. В. Кобцу за обеспечение бесперебойной работы установки в период измерений и А. О. Зонтикову за проведение расчетов.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Bazhazhina N. V., Mareev Yu. D., Pikelner L. B., Sedyshev P. V., Shvetsov V. N.* Analysis of Element and Isotope Composition of Samples by Neutron Spectroscopy at the IREN Facility // *Phys. Part. Nucl. Lett.* 2015. V. 12. P. 578–583.
2. *Grozdanov D. N., Fedorov N. A., Aliev F. A., Bystritsky V. M., Kopatch Yu. N., Ruskov I. N., Sedyshev P. V., Skoy V. R., Shvetsov V. N., Baraev A. V., Kologov A. V.* Elemental Analysis of Engine Parts of the Proton Rocket Carrier with Resonance Neutrons // *Phys. Part. Nucl. Lett.* 2018. V. 15. P. 537–540.
3. *Mazhen S. T., Borzakov S. B., Ergashov A. M., Mareev Yu. D., Sedyshev P. V., Simbirtseva N. V., Shvetsov V. N., Saprykina I. A., Zelentsova O. V.* Application of Neutron Resonance Capture Analysis for Determination of Isotope Composition of Fibula from Podbolotyevsky Burial Ground (10th Century AD) // *Proc. of Seminar ISINN-26. Dubna, 2019.* P. 128–133.
4. *Mughabghab S. F.* Neutron Cross Sections, Neutron Resonance Parameters and Thermal Cross Sections. New York: Acad. Press, 1984.
5. *Sukhoruchkin S. I., Soroko Z. N., Deriglazov V. V.* Low Energy Neutron Physics. Landolt-Bornstein. Berlin: Springer Verlag, 1998. V. I/16B.
6. *Postma H., Schillebeeckx P.* Neutron Resonance Analysis // *Neutron Methods for Archaeology and Cultural Heritage. Neutron Scattering Applications and Techniques / Eds.: N. Kardjilov, G. Festa. Cham: Springer, 2017.* P. 235–283.
7. *Gorini G. (Ancient Charm Collab.).* Ancient Charm: A Research Project for Neutron-Based Investigation of Cultural-Heritage Objects // *Nuovo Cim. C.* 2007. V. 30. P. 47–58.

8. Hasemi H., Harada M., Kai T., Shinohara T., Ooi M., Sato H., Kino K., Segawa M., Kamiyama T., Kiyonagi Y. Evaluation of Nuclide Density by Neutron Transmission at the NOBORU Instrument in J-PARC/MLF // Nucl. Instr. Meth. A. 2015. V. 773. P. 137–149.
9. Belikov O. V., Belozero A. V., Becher Yu., Bulycheva Yu., Fateev A. A., Galt A. A., Kayukov A. S., Krylov A. R., Kobetz V. V., Logachev P. V., Medvedko A. S., Meshkov I. N., Minashkin V. F., Pavlov V. M., Petrov V. A., Pyataev V. G., Rogov A. D., Sedyshv P. V., Shabratov V. G., Shvec V. A., Shvetsov V. N., Skrypnik A. V., Sumbaev A. P., Ujimtsev A. V., Zamrij V. N. Physical Start-Up of the First Stage of IREN Facility // J. Phys.: Conf. Ser. 2010. V. 205. P. 012053.
10. Голубков Е. А., Кобец В. В., Минашкин В. Ф., Михайлов К. И., Репкин А. Н., Сумбаев А. П., Удовиченко К. В., Швецов В. Н. Первые результаты наладки второй ускоряющей секции ускорителя ЛУЭ-200 установки ИРЕН. Сообщ. ОИЯИ Р9-2017-77. Дубна, 2017. 8 с.
11. Абрамзон М. Г., Кузнецов В. Д. Клад боспорских статеров III–IV вв. из Фанагории // Фанагория. Результаты археологических исследований. Т. 5 / Под ред. В. Д. Кузнецова. М.: Ин-т археологии РАН, 2017. С. 3–271.
12. Сапрыкина И. А., Гунчина О. Л. Химический состав металла боспорских статеров фанагорийского клада 2011 г. // Там же. С. 272–483.
13. Малэцки Х., Пикельнер Л. Б., Родионов К. Г., Саламатин И. М., Шаранов Э. И. Детектор нейтронов и гамма-лучей для работ в области нейтронной спектроскопии. Сообщ. ОИЯИ 13-6609. Дубна, 1972.
14. Zeliger D., Piescu N., Kim Hi San, Longo D., Pikel'ner L. B., Sharapov E. I. Neutron Resonances in Bromine // Sov. Phys. JETP. 1964. V. 18. P. 889–914.
15. Melkonian E., Havens W. W., Jr., Rainwater L. J. Slow Neutron Velocity Spectrometer Studies. V, Re, Ta, Ru, Cr, Ga // Phys. Rev. 1953. V. 92, No. 3. P. 702.
16. Ефимов В. Н., Шелонцев И. И. Расчет графиков для определения параметров нейтронных резонансов по методу пропускания образца. Сообщ. ОИЯИ Р-641. Дубна, 1961. 19 с.
17. Лукьянов А. А. Структура нейтронных сечений. М.: Атомиздат, 1978.
18. Сапрыкина И. А., Пельгунова Л. А., Гунчина О. Л., Равич И. Г., Кичанов С. Е., Козленко Д. П., Назаров К. Некоторые замечания о технике изготовления боспорских статеров из Фанагорийского клада 2011 г. // Фанагория. Результаты археологических исследований. Т. 5 / Под ред. В. Д. Кузнецова. М.: Ин-т археологии РАН, 2017. С. 484–493.
19. <https://www-nds.iaea.org/exfor/endl.htm>

Получено 22 ноября 2019 г.