

фторцирконата калия с содержанием гафния $\sim 5,0 \cdot 10^{-2}$ вес.%, показан на рис. 2, б. Результаты измерений содержания гафния для нескольких проб содержатся в таблице.

При измерении содержания гафния в цирконии по γ -пику с энергией 0,217 Мэв величина фона в этой области от радиоизотопов ^{89m}Zr и ^{89m}Y зависит от размеров полупроводникового детектора. Это подтверждают и измерения, проведенные на двух разных Ge(Li)-детекторах. При одинаковой интенсивности фотопика 0,217 Мэв регистрация на детекторе большего объема приводит к увеличению примерно в два раза интенсивности фотопика с энергией 0,588 Мэв, а фон в области 0,217 Мэв увеличивается при этом на $\sim 45\%$.

При работе с меньшим по объему детектором и выбранных условиях анализа нижний предел измерения гафния составляет $\sim 2 \cdot 10^{-3}$ вес.%, (для пробы циркония весом ~ 5 г при выходе нейтронов с энергией 14 Мэв, равно $\sim 1 \cdot 10^{10}$ нейтр.сек $^{-1}$, и $R = 9$ см). Содержание в пробе фтора до десятков процентов увеличивает значение нижнего предела измерения гафния до $\sim 1 \cdot 10^{-2}$ вес.%. Следует отметить, что конструкция примененного детектора не позволяла приблизить пробу при измерениях к чувствительному объему ближе 1 см. Выбирая детектор с улучшенными характеристиками, можно уменьшить величину нижнего предела измерения гафния. Например, для Ge(Li)-детектора колодезного типа [6] (полная эффективность для энергии 0,2 Мэв равна $\sim 20\%$) нижний предел измерения гафния согласно расчету уменьшается на порядок.

Результаты измерений показывают, что выбранные условия и аппаратура могут с успехом применяться для нейтронно-активационного анализа проб циркония на содержание примеси гафния в присутствии фтора.

Содержание гафния в пробах, вес.%

Материалы	Активационный метод	Спектральный метод
Цирконий	$0,8 \cdot 10^{-2}$	$< 10^{-2}$
Цирконий	$4,2 \cdot 10^{-2}$	$3,8 \cdot 10^{-2}$
Цирконий	$6,0 \cdot 10^{-2}$	$5,1 \cdot 10^{-2}$
Фторцирконат калия	$3,0 \cdot 10^{-2}$	$2,8 \cdot 10^{-2}$
Фторцирконат калия	$4,6 \cdot 10^{-2}$	$4,2 \cdot 10^{-2}$

Авторы выражают сердечную благодарность А. А. Луппову за помощь при проведении измерений на генераторе.

Поступило в Редакцию 15/VII 1974 г.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Кодри С. С. и др. «Атомная энергия», 1972, т. 32, вып. 5, с. 428.
2. Овечкин В. В., Руденко В. С. «Атомная энергия», 1973, т. 35, вып. 4, с. 277.
3. Strain J. and Lyon W. In: Proc. IAEA Symp. «Radiochemical Methods of Analysis», Salzburg, 19—23 Oct. 1964, v. I, p. 245.
4. Meinke W. and Shideler R. «Nucleonics», 1962, v. 20, N 3, p. 60.
5. Cooper J. «Nucl. Instrum. and Methods», 1970, v. 82, p. 273.
6. Verplanke J. Ibid., 1971, v. 96, N 4, p. 557.

Нейтронно-активационное измерение содержания фтора в уране и плутонии

МЕЛЕНТЬЕВ В. И., ОВЕЧКИН В. В.

УДК 543.08.53

В литературе сообщается о разработке инструментальных ядерно-физических методов измерения содержания фтора в конструкционных неактивных материалах, основанных на активации образцов нейтронами [1—3], γ -квантами [4,5] и заряженными частицами [6,7].

Применение нейтронно-активационного метода к образцам на основе делящихся веществ осложняется тем обстоятельством, что при нейтронном облучении возникает интенсивное запаздывающее β - и γ -излучение продуктов деления [8].

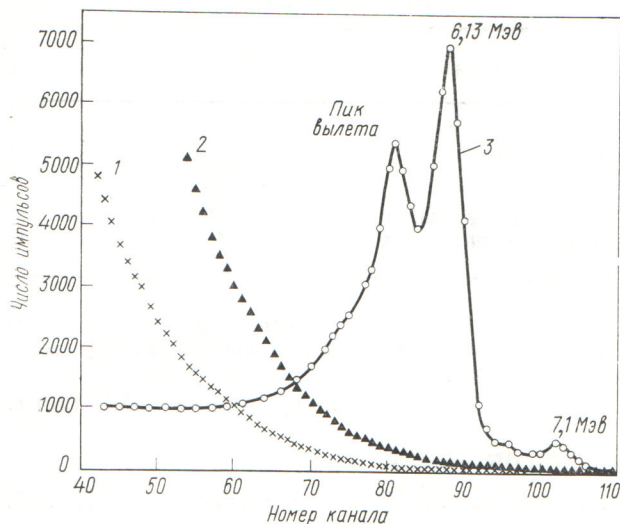
Анализ характеристик нейтронных реакций на фторе [9] и аппаратурного γ -спектра облученного урана и плутония (рисунок) позволяет сделать вывод о преимуществах использования реакции $^{19}\text{F}(n, \alpha)^{16}\text{N}$. Регистрация высокоэнергетического γ -излучения изотопа ^{16}N ($E_\gamma \approx 6$ Мэв, $T_{1/2} = 7,35$ сек) в области, где уже мал выход запаздывающего излучения продуктов деления, обеспечивает возможность получения более высокой избирательности и надежности результата анализа.

Весьма удобным средством активации оказывается применение изотопного источника на основе Be (α, n)-реакции, поскольку для средней энергии испускаемых

нейтронов (~ 5 Мэв) сечение $^{19}\text{F}(n, \alpha)$ -реакции сравнительно велико, а выход конкурирующей реакции $^{16}\text{O}(n, p)^{16}\text{N}$ пренебрежимо мал.

Для активации применен изотопный ^{238}Pu — Be-источник с выходом $1 \cdot 10^8$ нейтр.сек $^{-1}$, который был помещен в бак ($800 \times 800 \times 1200$ мм) с водой, окруженный бетонной защитой (толщина 400 мм). Пневмотранспортная система с пневмопроводом из полиэтиленовой трубы с внутренним диаметром 12 мм обеспечивала доставку облученных образцов из зоны активации в зону регистрации за время ≤ 2 сек. Наведенную активность регистрировали гамма-спектрометром на основе скинтиллятора NaI(Tl) диаметром 150×150 мм с колодцем диаметром 33×70 мм, находящимся в свинцовой защите с толщиной стенок 50 мм. Энергетическая область регистрации ($\Delta E = 5,6 \div 6,5$ Мэв) была выбрана с таким расчетом, чтобы обеспечить наименьший предел обнаружения фтора на фоне продуктов деления матрицы образца.

Образцы помещали в герметические полиэтиленовые вкладыши диаметром 6×17 мм, после чего их окружали кадмием толщиной 0,3 мм для уменьшения уровня β - и γ -излучения продуктов деления, которые



Аппаратурные γ -спектры облученных образцов:
 × — уран (6,06 г); ▲ — плутоний (5,36 г); ○ — фтор (2,19 г)

могли бы образоваться в матрице образца в процессе облучения тепловыми нейтронами; для транспортировки использовали контейнеры из нержавеющей стали. Содержание фтора в образце определяли по формуле

$$C_F (\text{отн.}) = \left[\frac{N - N_{\text{ф}}}{M} - \frac{C_{\text{д}}}{C_{\text{д.э}}} \frac{(N - N_{\text{ф}})}{M_{\text{э}}} \right] / n_F + \frac{C_{\text{ф.э}} C_{\text{д}}}{C_{\text{д.э}}}, \quad (1)$$

где N , $N_{\text{э}}$ — импульсы, зарегистрированные соответственно от анализируемого и контрольного образцов; $N_{\text{ф}}$ — фон детектора в энергетической области регистрации; M , $M_{\text{э}}$ — массы образца и эталона (образец с известным содержанием фтора $C_{\text{ф.э}}$ и делящегося вещества $C_{\text{д.э}}$); n_F — число импульсов, зарегистрированное от 1 г фтора и определенное активацией контрольных образцов; $C_{\text{д}}$ — концентрация делящегося вещества в анализируемом образце, отн. ед.

В таблице приведены результаты нейтронно-активационного анализа образцов на основе урана и плутония, причем каждый результат получали из пяти определений.

Погрешность измерения при введении фтора в образец равна $\pm 0,004$ (абс.), общую погрешность результата анализа определяли согласно работе [10]. Из таблицы следует, что результаты нейтронно-активационного анализа в пределах погрешности хорошо совпадают с введенным количеством фтора.

Нижний предел обнаружения фтора находили по критерию 2σ фона [11] из выражения

$$m_F (\%) \approx 2 (n_{\text{д}} C_{\text{д}} M)^{1/2} 10^2 / (n_F M). \quad (2)$$

При временных режимах анализа ($t_{\text{обл}} = 18$ сек, $t_{\text{выд}} = 4$ сек, $t_{\text{изм}} = 16$ сек и $T_{\text{цикл}} = 1$ мин) для 30 циклов облучения 10-граммовых образцов из ^{238}U были

Результаты определения фтора в образцах урана и плутония

Образец	Вес, г	Содержание фтора, вес. %	
		Введено	Определено нейтронно-активационным методом
$\text{UF}_4 + \text{UO}_2$	1,983	2,337	$2,16 \pm 0,05$
$\text{U} + (\text{C}_2\text{F}_4)_n$	6,010	1,940	$1,92 \pm 0,05$
$\text{UF}_4 + \text{UO}_2$	1,755	1,042	$1,28 \pm 0,05$
$\text{UF}_4 + \text{UO}_2$	1,6738	0,524	$0,49 \pm 0,03$
$\text{U} + (\text{C}_2\text{F}_4)_n$	6,121	0,198	$0,22 \pm 0,03$
$\text{U} + (\text{C}_2\text{F}_4)_n$	6,501	0,082	$0,08 \pm 0,02$
$\text{UF}_4 + \text{UO}_2$	1,3915	0,052	$0,06 \pm 0,01$
UF_4	5,3567	24,2	$23,9 \pm 0,5$
PuF_3	0,9969	19,2	$19,2 \pm 0,4$
$\text{PuO}_2 + \text{Na}_2\text{PuF}_6$	0,9975	2,50	$2,50 \pm 0,04$
$\text{Pu} + (\text{C}_2\text{F}_4)_n$	5,361	1,866	$1,86 \pm 0,06$
$\text{Pu} + (\text{C}_2\text{F}_4)_n$	5,334	0,381	$0,37 \pm 0,04$
$\text{Pu} + (\text{C}_2\text{F}_4)_n$	5,331	0,075	$0,07 \pm 0,02$

получены следующие значения: n_F ; $N_{\text{д}}$ (уран) и $N_{\text{д}}$ (плутоний) равны 37590; 2280 и 7940 импульсов соответственно. Отсюда следует, что m_F (уран) и m_F (плутоний) равны $2,5 \cdot 10^{-2}$ и $4,8 \cdot 10^{-2}$ вес. % соответственно. При этом фон детектора был равен $0,4$ имп.сек $^{-1}$. Дальнейшее улучшение чувствительности метода может быть достигнуто при использовании более интенсивных источников нейтронов.

Поступило в Редакцию 24/X 1974 г.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Wing J., Wahlgren M. «J. Radioanal. Chem.», 1969, v. 3, p. 37.
2. Лисовский Н. П. и др. «Хим. пром-сть», 1971, № 3, с. 235.
3. Мелентьев В. И., Овечкин В. В., Руденко В. С. «Атомная энергия», 1973, т. 34, вып. 1, с. 35.
4. Ohno S. e.a. «Analyst.», 1970, v. 95, p. 260.
5. Engelman C., Scherle A. «J. Radioanal. Chem.», 1970, v. 6, p. 235.
6. Jurai I. e.a. «Chem. listy», 1970, v. 64, N 11, p. 1121.
7. Gerrard M. «Isotop. Radiat. Techn.», 1970, v. 8, p. 118.
8. Fisher P., Engle L. «Phys. Rev.», 1964, v. 134, N 4B, p. B 796.
9. Маслов И. А., Лукницкий В. А. Справочник по нейтронному активационному анализу. Л., «Наука», 1971.
10. Алексеев Р. И., Коровин Ю. И. Руководство по вычислению и обработке результатов количественного анализа. М., Атомиздат, 1972.
11. De Soete D., Gijbels R., Hoste J. In: Seria of Monographie on Analytical Chemistry and Its Applications. V. 34. Neutron Activation Analysis. J. Wiley and Sons, 1972, p. 536.