

регистрации принимает следующий вид:

$$\epsilon = [1 - \exp(-\mu W)] \times \exp\left(-\sum_i \mu_i l_i\right) \frac{1}{\mu} \left[\tau \Phi(E_\Phi, E_\Pi, E_\Pi) + n \int_0^{E_{\max}} \frac{d_e \sigma}{dE} \Phi(E, E_\Pi, E_\Pi) dE \right]. \quad (5)$$

Результаты расчетов $\epsilon(E_\gamma)$ в диапазоне энергии γ -излучения 0,05—1,25 МэВ при $E_\Pi = 90$ кэВ и $E_\Pi = 30$ кэВ для $W = 1,4$ мм приведены графически на рис. 2. Для сравнения там же приведены экспериментально полученные значения эффективности регистрации для серийного детектора отечественного производства ДКД-Г-1 при таких же значениях W , E_Π и E_Π . Измерительная система включала зарядочувствительный преусилитель с уровнем собственных шумов ~ 2 кэВ, линейный усилитель и интегральный дискриминатор многоканального амплитудного анализатора LP-4840 и электронно-счетный частотомер ЧЗ-32. Порог дискриминации устанавливался с погрешностью не более $\pm 5\%$ по данным энергетической градуировки, проведенной в режиме спектрометра (см. рис. 1). Активность источников γ -излучения была известна с погрешностью не хуже $\pm 7\%$. Как следует из рис. 2, между экспериментальными и расчетными данными наблюдается удивительное согласие. Имеющееся расхождение носит систематический характер и может быть обусловлено тем, что расчетная формула (5) не учитывает вклад вторичных электронов, попадающих в чувствительную область из «мертвого слоя».

Поступило в Редакцию 1/IV 1976 г.

УДК 539.171.12

Использование протонов энергией 11 МэВ в активационном анализе

ЗАЛОКИН Б. В., КОНСТАНТИНОВ И. О., КРАСНОВ Н. Н.

При облучении элементов с $Z \geq 20$ протонами энергией $E_p \leq 11$ МэВ наибольшее сечение (сотни миллибарн) имеет (p, n) -реакция, значение сечения (p, γ) -реакции — порядка единиц миллибарна [1], сечение (p, α) -реакции мало вследствие кулоновского барьера для вылетающей α -частицы [2, 3], а $(p, 2n)$ - и (p, pn) -реакции имеют высокие энергетические пороги для большинства ядер. Относительно простая картина активации элементов с $Z \geq 20$ в значительной степени объясняет интерес, проявляемый в последние годы многими исследователями к использованию протонов энергией ≤ 11 МэВ в аналитических целях.

Описаны методики определения Ti [4—7], V [7, 8], Fe [9], Zn [7], Zr [10, 11], Nb [12]. Работа [13] посвящена определению примесей В, N, Na, Cr, Se, Br, Cd в воде. В работах [14—18] рассматриваются возможности определения 50 элементов при активации их протонами энергией 10 МэВ. Пределы обнаружения примесей в этих работах в зависимости от экспериментальных ус-

ловий составили 10^{-4} — $10^{-7}\%$, что вполне достаточно для решения многих практических задач.

Известно, что для расчета концентрации примеси абсолютным методом и оценки предела обнаружения данной примеси в активационном анализе на заряженных частицах необходимо знать выход радиоизотопа для толстой мишени [19, 20], который для протонов начальной энергией 11 МэВ определяется по формуле

$$Y = 6,25 \lambda n \int_{11}^0 \frac{\sigma(E)}{dE/d(\rho x)} dE, \quad (1)$$

где Y — выход радиоизотопа, расп./с·мкА·ч; λ — постоянная распада радиоизотопа, ч $^{-1}$; n — концентрация атомов данного изотопа, атом/г; $\sigma(E)$ — сечение ядерной реакции, см 2 ; $dE/d(\rho x)$ — тормозная способность элемента, МэВ/г·см 2 .

Для мишени, состоящей из естественной смеси стабильных изотопов, выход зависит только от начальной

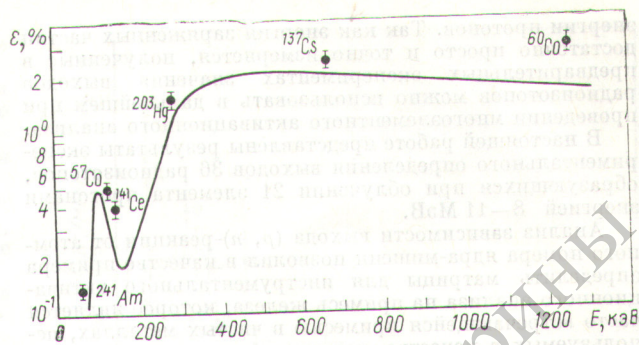


Рис. 2. Зависимость эффективности регистрации от энергии γ -квантов:

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Гольдин М. Л., Патер-Разумовский К. Р., Вирник Ф. В. «Атомная энергия», 1973, т. 34, вып. 2, с. 121.
2. Васильев С. Н., Чистяков М. И. В сб.: Ядерное приборостроение. Труды СНИИП. Вып. XIII. М., Атомиздат, 1970, с. 3.
3. Петушков А. А., Манчук В. А. «Мед. радиология», 1971, т. 71, с. 52.
4. Альфа-, бета- и гамма-спектроскопия. Вып. 1. Пер. с англ. Под ред. К. Зигбана. М., Атомиздат, 1969.

энергии протонов. Так как энергия заряженных частиц достаточно просто и точно измеряется, полученные в предварительных экспериментах значения выходов радиоизотопов можно использовать в дальнейшем при проведении многоэлементного активационного анализа.

В настоящей работе представлены результаты экспериментального определения выходов 36 радиоизотопов, образующихся при облучении 21 элемента протонами энергией 8—11 МэВ.

Анализ зависимости выхода (p, n)-реакции от атомного номера ядра-мишени позволил в качестве примера определить матрицы для инструментального активационного анализа на примесь железа, которое является часто встречающейся примесью в чистых металлах, используемых в качестве материала мишени при производстве радиоизотопов на циклотроне.

Облучение образцов проводили на выведенном пучке 150-см циклотрона ФЭИ (г. Обнинск). Энергию протонов измеряли кремниевым поверхностно-барьерным

детектором, ток — микроамперметром. Для изменения энергии протонов использовали алюминиевые поглощающие фольги, энергетические потери в которых рассчитывали по данным работы [21].

Измерение активности облученных образцов проводили на сцинтилляционном гамма-спектрометре с кристаллом NaI (Tl) диаметром 70 и высотой 70 мм и на полупроводниковом спектрометре с Ge (Li)-детектором объемом 22 см³. Спектрометры были проградуированы по эффективности с помощью эталонных источников ОСФИ.

Вычисление выхода радиоизотопа проводили по формуле

$$Y = \lambda B / I [1 - \exp(-\lambda t)], \quad (2)$$

где B — активность радиоизотопа на конец облучения, расп./с; I — ток облучения, мкА; t — время облучения, ч.

При вычислении активности использовали характеристики распада радиоизотопов из работы [22].

В таблице представлены результаты измерения выходов радиоизотопов. Погрешность в абсолютном значении составляет $\pm 15\%$. При изменении энергии протонов в пределах 0,5 МэВ можно использовать линейную интерполяцию. Значения выходов радиоизотопов при энергии 11 МэВ в пределах экспериментальных погрешностей совпадают со значением выходов, полученных путем интегрирования функций возбуждения соответствующих ядерных реакций типа (p, n): ⁴⁵Sc (p, n) ⁴⁵Ti [23, 24]; ⁴⁸Ti (p, n) ⁴⁸V [25]; ⁵¹V (p, n) ⁵¹Cr [26, 27, 23]; ⁵²Cr (p, n) ⁵²Mn [26]; ⁵⁶Fe (p, n) ⁵⁶Co [28, 29]; ⁶⁵Cu (p, n) ⁶⁵Zn [26, 30]; ⁸⁹Y (p, n) ⁸⁹Zr [31, 32]; ¹¹¹Cd (p, n) ¹¹¹In [26]; ¹¹⁵Sn (p, n) ¹¹⁵Sb [33].

Полученные значения выходов радиоизотопов для толстых мишеней использованы для качественного анализа зависимости выхода (p, n)-реакции от атомного номера ядра-мишени. С этой целью преобразуем формулу (1) к следующему виду:

$$Y = \lambda K J(A, Z), \quad (3)$$

где K — распространенность изотопа; $J(A, Z) =$

$$= 3,8 \cdot 10^{36} \frac{1}{M} \int_{11}^0 \frac{\sigma(E) dE}{dE/d(\rho x)} - \text{выход радиоактивных}$$

атомов на 1 мкКл упавших протонов, приведенный к значению распространенности $K = 1$ (M — атомная масса элемента). Очевидно, что выход (p, n)-реакции $L(A, Z)$ есть сумма выходов радиоактивных атомов, образующихся в результате (p, n)-реакции, в основном и изомерных состояниях:

$$L(A, Z) = \sum J(A, Z). \quad (4)$$

По формулам (3) и (4) с использованием экспериментальных значений Y были вычислены выходы (p, n)-реакций $L(A, Z)$ для толстых мишеней для протонов начальной энергией 11 МэВ. Были использованы также опубликованные данные по сечениям (p, n)-реакций:

⁵²Cr (p, n) ⁵²Mn [26]; ⁶³Cu (p, n) ⁶³Zn [26]; ¹¹⁹Sn (p, n) ¹¹⁹Sb [33]; ¹⁴⁰Ce (p, n) ¹⁴⁰Pr [37]; ¹⁶⁰Gd (p, n) ¹⁶⁰Tb [32]; ¹⁹⁷Au (p, n) ¹⁹⁷Hg [38]; ²⁰⁹Bi (p, n) ²⁰⁹Po [2]; ⁶⁰Ni (p, n) ⁶⁰Cu [34]; ⁶⁸Zn (p, n) ⁶⁸Ga [34]; ¹³³Cs (p, n) ¹³³Ba [35]; ¹⁴²Ce (p, n) ¹⁴²Pr [37]; ¹⁸¹Ta (p, n) ¹⁸¹W [38]; ¹⁹⁷Au (p, n) ¹⁹⁷Hg [38]; ¹¹²Cd (p, n) ^{112,112m}In [36].

На рисунке представлены значения выхода (p, n)-реакции $L(A, Z)$ в зависимости от атомного номера ядра-мишени. Отметим следующие особенности этой зависимости:

1) значительное уменьшение выхода (в 10—15 раз) с увеличением атомного номера от 40 до 200, что обусловлено уменьшением сечения $\sigma(E)$ реакции (p, n)

Выходы радиоизотопов при облучении толстых мишеней природного изотопного состава протонами энергией 8—11 МэВ, расп./с·мкА·ч

Элемент	Радиоизотоп	E_p , МэВ							K
		8,0	8,5	9,0	9,5	10,0	10,5	11,0	
Ca	⁴⁴ Sc	0,9	1,1	1,2	1,4	1,5	1,7	1,8	7
Ca	^{44m} Sc	0,3	0,4	0,5	0,6	0,7	0,9	1,0	5
Ca	⁴⁸ Sc	2,0	2,1	2,3	2,4	2,6	2,7	2,9	5
Sc	⁴⁵ Ti	3,4	4,1	4,8	5,7	6,7	7,8	9,3	8
Ti	⁴⁸ V	1,6	2,1	2,8	3,5	4,3	5,1	6,0	6
V	⁵¹ Cr	3,4	4,2	5,0	6,0	7,0	7,9	8,8	6
Cr	⁵² Mn	0,37	0,64	0,92	1,3	1,8	2,3	2,9	6
Cr	⁵⁴ Mn	2,6	3,3	4,1	2,8	5,6	6,1	6,6	3
Fe	⁵⁶ Co	0,37	0,92	1,3	2,2	2,8	3,7	4,4	5
Cu	⁶⁵ Zn	0,92	1,1	1,3	1,6	1,9	2,2	2,5	5
Zn	⁶⁶ Ga	1,1	1,9	3,0	4,0	5,3	6,5	8,1	7
Ga	⁶⁹ Ge	1,6	2,0	2,3	2,7	3,2	3,8	4,5	7
Ge	⁷² As	0,6	1,0	1,3	1,6	2,0	2,7	4,0	7
Ge	⁷⁴ As	0,6	0,7	1,0	1,2	1,6	2,2	2,9	6
Rb	⁸⁵ Sr	0,5	0,6	0,8	0,9	1,0	1,2	1,4	6
Rb	^{85m} Sr	1,8	2,3	2,8	3,3	3,8	4,3	5,0	8
Rb	^{87m} Sr	0,5	0,6	0,7	0,8	0,9	1,0	1,2	8
Sr	⁸⁶ Y	1,5	2,5	3,5	4,5	6,0	7,5	9,5	6
Y	⁸⁹ Zr	0,7	0,9	1,2	1,4	1,8	2,4	3,2	7
Nb	^{93m} Mo	0,5	0,9	1,7	2,7	3,8	5,3	7,2	6
Mo	^{95m} Tc	0,9	1,2	1,5	1,9	2,3	2,8	3,8	4
Mo	⁹⁶ Tc	0,6	0,8	1,0	1,3	1,6	1,9	2,3	6
Cd	¹¹¹ In	0,9	1,3	1,7	2,2	2,9	3,5	4,4	6
Sn	¹¹⁷ Sb	1,3	1,7	2,3	3,1	3,9	4,9	6,2	7
Sn	^{181m} Sb	0,3	0,4	0,85	1,3	1,9	2,8	4,1	7
Sn	¹²⁰ B	0,11	0,19	0,32	0,48	0,74	1,0	1,5	5
Sn	¹²² Sb	0,27	0,41	0,55	0,7	0,89	1,1	1,2	6
Sn	¹²⁴ Sb	1,5	2,1	2,8	3,5	4,2	5,0	5,6	4
Sb	¹²¹ Te	2,6	3,1	4,0	5,1	6,5	8,1	9,9	5
Sb	^{121m} Te	1,4	1,8	2,5	3,4	4,5	5,9	7,6	4
Sb	^{123m} Te	0,29	0,38	0,52	0,66	0,82	1,0	1,2	5
Cs	¹³³ Ba	1,4	2,2	3,1	4,3	5,8	7,5	9,9	6
W	^{182m} Re	0,45	0,75	1,3	2,2	3,4	4,9	7,4	6
W	¹⁸³ Re	0,25	0,45	0,65	1,0	1,8	3,0	4,8	4
W	¹⁸⁴ Re	0,95	1,7	2,8	4,3	5,8	7,4	8,8	4
Pb	²⁰⁶ Bi	0,35	0,55	0,8	1,2	1,8	2,7	3,6	5

вследствие роста кулоновского барьера с увеличением Z , а также уменьшением концентрации атомов n ;

2) изменение выхода следует тому же закону, что и средний избыток нейтронов $(N - Z)/A$. Отметим, что такую же закономерность наблюдали в выходах нейтронов из толстых мишеней, бомбардируемых протонами энергией 18 и 32 МэВ [39];

3) наблюдается резкое уменьшение выхода по сравнению с соседними изотопами на изотопах $^{54}_{24}\text{Cr}$, $^{56}_{26}\text{Fe}$, $^{142}_{58}\text{Ce}$, у которых число нейтронов превышает магические числа 28 и 82 на два нейтрона соответственно;

4) выход на изотопе $^{92}_{28}\text{Ni}$, у которого число протонов равно магическому числу 28, также меньше, чем на соседних изотопах, за исключением изотопов с $N = 28 + 2$.

Формулы (3), (4) и рисунок позволяют оценить верхнюю границу выхода радиоизотопов при облучении толстой мишени протонами с энергией 11 МэВ и на основе этой оценки определить матрицы, в которых возможен инструментальный метод определения той или иной примеси. Например, одной из распространенных технологических примесей в чистых металлах, используемых в качестве материала мишеней при производстве радиоизотопов на циклотроне, является железо, которое можно определять инструментально по радиоизотопу ^{56}Co в следующих матрицах: Be, B, C, O, F, Na, Mg, Al, Si, P, S, Cl, Ar, K, Ca, Sc, Mn, Co, Ni, Ga, Se, Br, Y, Nb, Rh, Ag, Ba, Ce, Pr, Tl, Dy, Ho, Hf, Ta, Ir, Au, Tl, Bi.

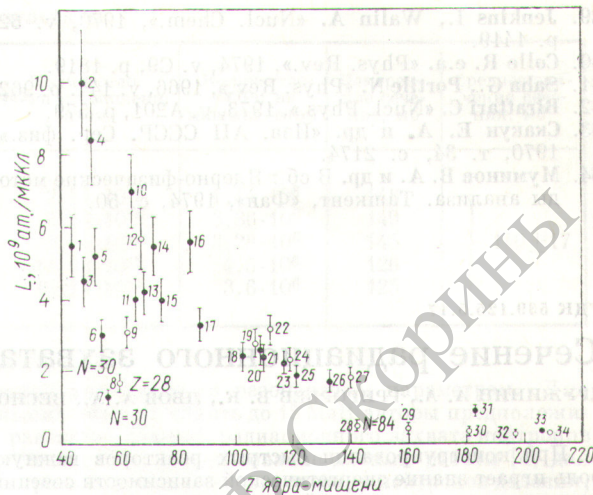
Выход радиоактивных атомов на 1 мкКл в зависимости от атомного номера (см. рисунок) практически равен выходу нейтронов из толстой моноизотопной мишени при облучении ее протонами энергией 11 МэВ, поскольку доминирующей реакцией является (p, n) -реакция. Эти значения выходов нейтронов можно использовать для оценки эффекта активации матрицы вторичными нейтронами, учитывая их энергетический спектр и угловое распределение [40].

Проведение активационного анализа с использованием протонов энергией $E_p \leq 11$ МэВ абсолютным методом требует знания выходов радиоизотопов для толстых мишеней. Знание выходов позволяет оптимальным образом планировать эксперимент, определять концентрацию примеси, оценивать предел ее обнаружения и необходимый коэффициент очистки от мешающих радиоизотопов при использовании радиохимии. Дальнейшие измерения выходов радиоизотопов позволят создать полную систему констант для протонно-активационного анализа.

Поступило в Редакцию 16/IV 1976 г.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Cohen B. «Phys. Rev.», 1955, v. 100, p. 206.
2. Andre C. e.a. «Phys. Rev.», 1956, v. 101, p. 645.
3. Furukawa M. «Nucl. Phys.», 1966, v. 77, p. 565.
4. Schweikert E., Albert P. «Compt. rend., Ser. C.», 1966, v. 262, p. 87.
5. Мазитов Б. С., Мухаммедов С. В. сб.: Активационный анализ. Ташкент, «Фан», 1971, с. 212.
6. Zelst L. «J. Radioanal. Chem.», 1972, v. 12, p. 129.
7. Krasnov N. e.a. «J. Radioanal. Chem.», 1973, v. 16, p. 395.
8. Debrun J., Barrandon J., Albert Ph. In: Uses of Cyclotrons in Chemistry, Metallurgy and Biology. London, Butterworths, 1970, p. 354.
9. Schweikert E., Albert Ph. «Compt. rend., Ser. C.», 1966, v. 262, p. 342.



Выход (p, n) -реакции $L(A, Z)$ для протонов энергией 11 МэВ:

● — настоящая работа; ○ — данные других работ; облучаемые изотопы: 1 — ^{44}Ca ; 2 — ^{46}Ca ; 3 — ^{48}Ti ; 4 — ^{91}Y ; 5 — ^{52}Cr ; 6 — ^{54}Cr ; 7 — ^{56}Fe ; 8 — ^{60}Ni ; 9 — ^{63}Cu ; 10 — ^{65}Cu ; 11 — ^{68}Zn ; 12 — ^{68}Zn ; 13 — ^{69}Ga ; 14 — ^{72}Ge ; 15 — ^{73}As ; 16 — ^{85}Rb ; 17 — ^{88}Sr ; 18 — ^{103}Rh ; 19 — ^{107}Ag ; 20 — ^{109}Ag ; 21 — ^{110}Cd ; 22 — ^{112}Cd ; 23 — ^{117}Sn ; 24 — ^{119}Sn ; 25 — ^{121}Sb ; 26 — ^{133}Cs ; 27 — ^{140}Ce ; 28 — ^{142}Ce ; 29 — ^{160}Gd ; 30 — ^{181}Ta ; 31 — ^{183}W ; 32 — ^{197}Au ; 33 — ^{206}Pb ; 34 — ^{209}Bi

10. Riddle D., Schweikert E. «Anal. Chem.», 1974, v. 46, p. 395.
11. Kormali S., Schweikert E. «J. Radioanal. Chem.», 1974, v. 22, p. 139.
12. Tomita J., Saisho H. «Nature», 1962, N 195, p. 1189.
13. Bankert S., Bloom S., Santer G. «Anal. Chem.», 1973, v. 45, p. 692.
14. Debrun J., Barrandon J. «J. Radioanal. Chem.», 1973, v. 17, p. 291.
15. Barrandon J., Debrun J., Kohn A. «J. Radioanal. Chem.», 1973, v. 16, p. 617.
16. Barrandon J. e.a. «Anal. Chim. Acta», 1974, v. 73, p. 39.
17. Debrun J. e.a. «Anal. Chem.», 1975, v. 47, p. 637.
18. Benaben P., Barrandon J., Debrun J. «Anal. Chim. Acta», 1975, v. 78, p. 129.
19. Краснов Н. Н. «Атомная энергия», 1969, т. 26, вып. 3, с. 284.
20. Krasnov N. «Intern. J. Appl. Rad. and Isotopes», 1974, v. 25, p. 223.
21. Williamson C., Boujot J., Picard J. Rap. CEA-R-3042, 1966.
22. Bowman W., Macmurdo K. «Atomic Data and Nuclear Data Tables», 1974, v. 13, N 2, 3.
23. Dell G., Ploughe W., Hausman H. «Nucl. Phys.», 1965, v. 64, p. 513.
24. Thomas R., Bartolini W. «Nucl. Phys.», 1968, v. A 106, p. 323.
25. Tanaka S. «Atomic Energy Soc. Japan», 1959, v. 1, p. 171.
26. Wing J., Huizenga J. «Phys. Rev.», 1962, v. 128, p. 280.
27. Chodil G. e. a. «Nucl. Phys.», 1967, v. A93, p. 648.
28. Tanaka S., Furukawa M. «J. Phys. Soc. Japan», 1959, v. 14, p. 1269.