

Возможности гамма-активационного метода анализа на кислород и фтор с регистрацией запаздывающих нейтронов

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

УДК 543.53

Использование запаздывающих нейтронов в активационном анализе позволяет существенно увеличить избирательность по отношению к кислороду и удачно дополняет γ - и нейтронно-активационный методы его определения, так как при этом исключается влияние примесей бора, фтора и других элементов, которые после активации дают излучение, конкурирующее с излучением ядер-продуктов реакций $^{16}\text{O}(\gamma, n)^{15}\text{O}$ и $^{16}\text{O}(n, p)^{16}\text{N}$. Данный метод целесообразно применять для быстрого анализа на кислород и фтор больших образцов металлов и других веществ без разрушения образцов.

С целью изучения физических основ метода в настоящей работе измерен выход и определено сечение образования запаздывающих нейтронов в реакции $^{18}\text{O}(\gamma, p)^{17}\text{N}$ в области от порога до 25 Мэв с помощью бетатрона с интенсивностью 30 р/мин на 1 м от мишени [1], а также измерен выход запаздывающих нейтронов из тяжелоокислородной воды H_2^{18}O и фторопласта-4 $[\text{CF}_2]_n$ в области 25—70 Мэв на линейном электронном ускорителе с током 0,01 мка [2, 3].

Регистрация начиналась после достижения насыщения и проводилась в течение 30 сек с задержкой 0,1 сек после выключения пучка. Детектор на основе счетчиков с BF_3 имел эффективность $\epsilon = 0,33\%$, фон установки в отсутствие пучка составлял $n_{\text{ф}} = 4$ имп/мин. Тяжелокислородную воду в количестве 0,98 г·моль (50% ^{18}O) помещали в бескислородный (плексигласовый) контейнер с внутренним диаметром 40 мм и высотой 34 мм при толщине стенок 4 мм. Для учета фона, эффектов поглощения и рассеяния γ -квантов применяли идентичный по форме образец из обычной воды. Вес образца, содержащего фтор, составлял 31 г, его диаметр 35 мм и высота 20 мм.

Выход запаздывающих нейтронов из тонкой мишени H_2^{18}O в интервале 16,5—24,5 Мэв, отнесенный к 1 мка тока ионизационной камеры Флауэрса и одному моль ^{18}O показан на рис. 1. Сечение реакции $^{18}\text{O}(\gamma, p)^{17}\text{N}$, полученное в настоящей работе, приведено на рис. 2. Максимальное значение $\sigma_{\gamma p}(E) = 12 \pm 4$ мбарн, ошибка в определении величины которого определяется статистической точностью измерения выхода (1%), дрейфом облучающей аппаратуры

и измерительной установки (4%) и погрешностью метода расчета сечения, составляющей около 20%. Кроме того, в суммарную ошибку входят погрешности измерения концентрации ^{18}O (2%), калибровки нейтронного источника (3%) и расчета чувствительности абсолютной камеры ($\sim 5\%$). Положение максимума определено равным $23,0 \pm 0,5$ Мэв. Тщательный учет всех возможных погрешностей, а также тот факт, что сечение $\sigma_{\gamma p}(E)$, полученное нами с помощью методики толстого образца [4], хорошо согласуется с сечением для тонкого образца, позволяют заключить, что результаты работы [5] завышены, а данные [6] несколько занижены. Полученное в настоящей работе сечение реакции $^{18}\text{O}(\gamma, p)^{17}\text{N}$ может быть использовано в активационном анализе для расчетной оценки выхода запаздывающих нейтронов из больших образцов кислородсодержащих веществ, которую можно сделать с помощью лавинной теории [7].

Выход запаздывающих нейтронов из 1 г H_2^{18}O в области энергий 25—70 Мэв и из 1 г фторопласта-4 для энергий 51—67 Мэв показан на рис. 3. Для удобства сравнения полученных результатов с выходами запаздывающих нейтронов из образцов SiO_2 и LiF весом по 1 г,

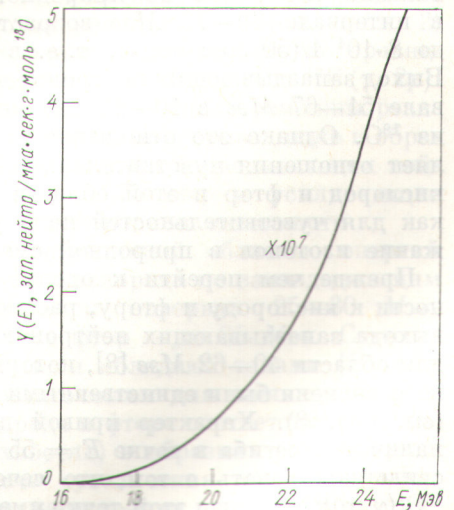
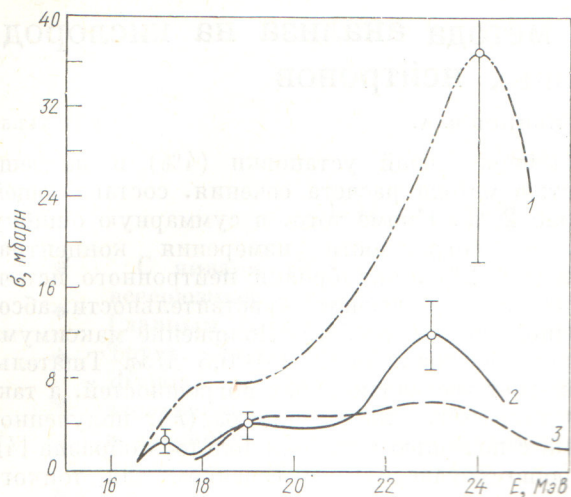


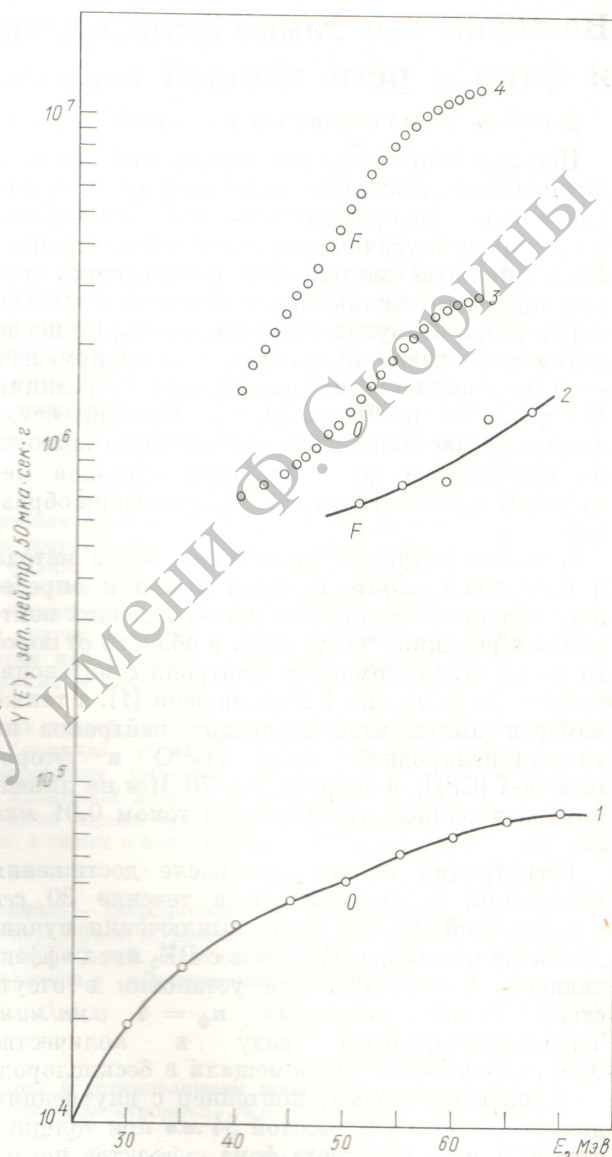
Рис. 1. Выход запаздывающих нейтронов из тонкого образца ^{18}O , приведенный к току абсолютной ионизационной камеры.



Р и с. 2. Поперечное сечение реакции $^{18}\text{O}(\gamma, p)^{17}\text{N}$: 1 — данные работы [5]; 2 — настоящая работа; 3 — данные работы [6].

измеренными в работе [8], они были приведены к току 50 мкА, использованному в указанной работе и по величине характерному для современных электронных ускорителей различных типов (микротрон, линейный ускоритель), пригодных для прикладного применения. Следует отметить, что в этой области энергий вклад в выход запаздывающих нейтронов дополнительно вносят реакции $^{12}\text{C}(\gamma, 3p)^9\text{Li}$ (порог 47,3 МэВ) и $^{18}\text{O}(\gamma, 2p)^{16}\text{O}$ (порог 29 МэВ). По данным настоящей работы, выход запаздывающих нейтронов из природного кислорода в интервале 30—70 МэВ возрастает от $2 \cdot 10^4$ до $8 \cdot 10^4$ 1/(50 мкА·сек)·г, т. е. в четыре раза. Выход запаздывающих нейтронов из ^{19}F в интервале 51—67 МэВ в 10—13 раз меньше выхода из ^{18}O . Однако это отношение еще не определяет отношения чувствительностей анализа на кислород и фтор в этой области энергий, так как для чувствительностей надо учесть содержание изотопов в природной смеси.

Прежде чем перейти к оценке чувствительности к кислороду и фтору, рассмотрим кривые выхода запаздывающих нейтронов из ^{18}O и ^{19}F для области 40—62 МэВ [8], которые до последнего времени были единственными в литературе (см. рис. 3). Характер кривой для ^{18}O , т. е. наличие перегиба в точке $E = 55$ МэВ, должен свидетельствовать о том, что сечение реакции $^{18}\text{O}(\gamma, p)^{17}\text{N}$ вблизи этой точки имеет максимум, так как, несмотря на всевозрастающее количество (в зависимости от $E_{\gamma\text{ макс}}$) и γ -квантов с энергиями, соответствующими резонансам



Р и с. 3. Выход запаздывающих нейтронов из кислорода и фтора: 1, 2 — данные настоящей работы; 3, 4 — данные работы [8].

в $\sigma_{\gamma p}(E)$, кривая выхода не показывает постоянного возрастания, что следовало бы ожидать при отсутствии резонанса вблизи $E = 55$ МэВ, а наоборот, обнаруживает тенденцию к «насыщению», что для области энергий выше 62 МэВ можно объяснить спадом резонансного пика. В литературе, однако, не указывается на существование резонанса в этой области энергий для фотоядерных реакций с вылетом одной частицы. Аналогичный характер имеет и кривая выхода реакции $^{19}\text{F}(\gamma, 2p)$, в то время как

данные настоящей работы показывают возрастание, что согласуется с предположением об отсуствии значительных изменений в сечении реакций $^{18}\text{O}(\gamma, p)$ и $^{19}\text{F}(\gamma, 2p)$ в этой области энергий.

Имеется различие (приблизительно на один порядок величины) между измеренными значениями активности ^{17}N . Оно слишком велико для того, чтобы объяснить его двумя возможными причинами: различием спектров нейтронов из калибровочных источников и геометрией опыта. В работе [8] не приведены данные о калибровке детектора, геометрии опыта и точности полученных результатов, и поэтому представляется возможным оценить степень влияния этих факторов на результаты обоих экспериментов.

Примем, следуя работе [8], за чувствительность метода то количество элемента, которое в одном акте облучения дает выход, равный величине фона установки, зарегистрированного за время измерения. Тогда можно записать

$$m_{\text{мин}}(E) = \frac{n_{\text{ф}} t_{\text{изм}}}{\epsilon Y(E)} = \frac{606}{Y(E)}$$

где $n_{\text{ф}} = 4 \text{ имп/мин}$; $t_{\text{изм}} = 30 \text{ сек}$; $\epsilon = 0,33\%$. Минимальная определяемая концентрация находится из выражения

$$C_{\text{мин}}(E) = \frac{m_{\text{мин}}(E)}{m_{\text{обр}}} = \frac{606}{Y(E) m_{\text{обр}}}$$

В табл. 1 приведены рассчитанные таким путем значения чувствительности с использованием экспериментальных результатов данной работы и работы [8]. Значения получены для тока электронов 50 мка .

Имеющееся различие данных для одного элемента обусловлено обсужденным выше различием в выходах. При энергиях γ -квантов $40\text{--}60 \text{ Мэв}$ можно достигнуть практически равномерного облучения образцов весом в сотни граммов и больше. Тогда минимальная регистрируемая концентрация кислорода составит

Чувствительность определения кислорода и фтора Таблица 1

Энергия, Мэв	Кислород, г		Фтор, г	
	настоящая работа	[8]	настоящая работа	[8]
40	$2,70 \cdot 10^{-3}$	$1,40 \cdot 10^{-4}$	—	$7,90 \cdot 10^{-5}$
50	$1,90 \cdot 10^{-3}$	$0,80 \cdot 10^{-4}$	$1,52 \cdot 10^{-4}$	$3,64 \cdot 10^{-5}$
60	$1,60 \cdot 10^{-3}$	$0,52 \cdot 10^{-4}$	$1,30 \cdot 10^{-4}$	$1,20 \cdot 10^{-5}$
70	$1,42 \cdot 10^{-3}$	$0,28 \cdot 10^{-4}$	$1,10 \cdot 10^{-4}$	$0,92 \cdot 10^{-5}$

Возможные сопутствующие реакции Таблица 2

Номер п/п	Элемент	Реакция	Содержание изотопа, %	Порог, Мэв	$T_{1/2}$, сек
1	B	$^{11}\text{B}(\gamma, 2p)^9\text{Li}$	81	31,3	0,47
2	C	$^{12}\text{C}(\gamma, 3p)^9\text{Li}$	100	47,3	0,47
3	Ne	$^{20}\text{Ne}(\gamma, 3p)^{17}\text{N}$	30,5	36,8	4,15
4	Na	$^{23}\text{Na}(\gamma, \alpha 2p)^{17}\text{N}$	100	34,4	4,15
5	Mg	$^{24}\text{Mg}(\gamma, \alpha 3p)^{17}\text{N}$	77	46,1	4,15
6	Al	$^{27}\text{Al}(\gamma, 2\alpha 2p)^{17}\text{N}$	100	44,5	4,15
7	U, Th	Нейтронное фотоделение	100	$n - 4 \div 3$ $\gamma - 5,1$	0,2— 60
				5,5	

$10^{-3}\text{--}10^{-4}\%$, т. е. величину, меньшую, чем концентрация кислорода в окисной пленке (для наиболее распространенных металлов $10^{-2}\text{--}10^{-3}\%$). Поскольку удаление поверхностных окислов при малом периоде полураспада ($4,15 \text{ сек}$) — сложная задача, то метод ориентируется на такие большие образцы или системы, в которых имеется до $10^{-3}\%$ кислорода или отбор проб из которых затруднен.

Для устранения влияния незначительного количества возможных мешающих реакций [3, 8] (табл. 2) можно применить простые дискриминационные методы (по энергии облучения и времени измерения). Некоторые элементы (Ne, U, Th) находятся в чистых веществах в таких количествах, которые не влияют на анализ, тогда реакции 4—6 (см. табл. 2) должны иметь очень малое сечение по сравнению с сечением реакций $^{18}\text{O}(\gamma, p)$ и $^{19}\text{F}(\gamma, 2p)$. Отметим, что на этих изотопах возможны реакции $^{18}\text{O}(\gamma, 2p)$ и $^{19}\text{F}(\gamma, 3p)$, приводящие к образованию предшественника запаздывающих нейтронов ^{16}O ($T_{1/2} = 0,74 \text{ сек}$) и усиливающие нужный эффект нейтронной активности.

Наиболее перспективной областью энергий для определения кислорода по запаздывающим нейтронам является интервал $25\text{--}30 \text{ Мэв}$, а для анализа на фтор — до 35 Мэв . Существующие ускорители обладают токами (50 мка и больше), достаточными для выявления 10^{-4} и $10^{-5}\%$ кислорода и фтора соответственно (при чистых поверхностях) в образцах весом порядка 1 г . За счет увеличения массы образца, эффективности регистрации нейтронов и цикличности анализа указанное теоретическое значение может быть повышено еще на один-два порядка.

Авторы выражают глубокую благодарность Л. Л. Кунину за ценные указания и Б. А. Чапыжникову и А. М. Вассерману за обсуждение ряда вопросов настоящей работы.

Поступила в Редакцию 29/XI 1972 г.
В окончательной редакции 3/IV 1973 г.

ЛИТЕРАТУРА

1. Дорош М. М., Мазюкевич Н. П., Шкода-Ульянов В. А. «Укр. физ. ж.», 1972, т. XVII, с. 847.

2. Дорош М. М., Мазюкевич Н. П., Шкода-Ульянов В. А. «Атомная энергия», 1966, т. 21, с. 163.
3. Дорош М. М., Мазюкевич Н. П., Шкода-Ульянов В. А. «Атомная энергия», 1968, т. 24, с. 274.
4. Шкода-Ульянов В. А. В сб.: Труды конференции по ядерным реакциям при малых и средних энергиях (Москва, 1957). М., Изд-во АН СССР, 1958, с. 485.
5. Stephens W. e.a. Phys. Rev., 1951, v. 82, p. 511.
6. Kosiek R. e.a. Z. Phys., 1964, v. 179, p. 9.
7. Белевский С. З. Лавинные процессы в космических лучах. М. — Л., Гостехтеориздат, 1948.
8. Engelmann Ch., Scherle A. J. Radioanal. Chem., 1970, v. 6, p. 235.

ПОРЯДОК ДЕПОНИРОВАНИЯ СТАТЕЙ

Депонирование статей осуществляется или по просьбе авторов, или по решению редакционной коллегии журнала.

В журнале печатаются подробные аннотации статей, а полные тексты хранятся в редакции в течение пяти лет и высылаются читателям по их требованию наложенным платежом. Объем аннотации не должен превышать 2 стр. машинописного текста, а объем депонируемого текста — 12 стр. В отдельных случаях в аннотацию можно включить рисунок, таблицу, основные формулы и т. п. (уменьшив соответственно объем текстового материала аннотации).

Депонированные статьи являются научными публикациями и учитываются при защите диссертаций.

Статьи, представленные для депонирования, должны быть окончательно отработаны авторами и пригодны для фотографического воспроизведения (первый экземпляр), в связи с чем необходимо соблюдать следующие правила их подготовки.

1. Текст следует печатать на машинке с жирной черной лентой через два интервала на одной стороне белой односортовой бумаги форматом 21×30 см с полями сверху, слева и снизу не менее 3 см и справа 1 см. При перепечатке текста на первой странице необходимо отступать на 10 см сверху (место для клише «Атомная энергия»). Никакие поправки чернилами или карандашом над словами не допускаются. Исправления выполняются путем вклеивания.

2. Необходимо вписывать формулы тушью или черными чернилами; разметку формул в тексте (подчеркивание красным или синим карандашом и т. д.) делать не следует.

3. Рисунки необходимо выполнять на ватманской бумаге или на кальке, наклеивать их на стандартные форматные страницы и помещать в конце статьи, после таблиц и списка литературы. Каждый рисунок следует снабжать подрисуночной подписью. Рисунки должны быть достаточно отчетливыми для фотографического воспроизведения. Включение в рукопись тоновых рисунков не допускается в связи с трудностью их копирования. В необходимых случаях тоновый рисунок выполняется штриховым методом.

4. Допускается в виде исключения печатать отдельные (большие) таблицы на неформатных листах (вклейках).

5. Все страницы рукописи (включая приложения) должны быть пронумерованы (первой страницей считается титульный лист, на нем цифра «1» не ставится, на следующей странице представляется цифра «2» и т. д.). Порядковый номер печатается в середине верхнего поля страницы.

6. Первый экземпляр рукописи должен быть подписан автором в конце статьи.

В случае несоблюдения указанных правил оформления статей рукописи возвращаются авторам.

Копии текстов депонированных статей высылаются читателям по их запросам без ограничений. При оформлении заказа на тексты необходимо указывать регистрационный номер статьи, который помещен в конце аннотации. Советским читателям копии высылаются наложенным платежом; цена одной копии 40 коп.

Заказы направлять в редакцию журнала по адресу:
101876, Москва, Центр, ул. Кирова, 18, тел. 223-51-89.