

Таблица 2

Экспериментальные значения равновесного фактора разделения и расчетные значения ВЭТТ для различной температуры

Температура, К	Давление в колонне, $10^{-5}$ Па	Плотность орошения, кг/(м <sup>2</sup> ·с)	Расчетное значение ВЭТТ, см	Число ступеней в колонне	Равновесный фактор разделения, $q_0$
300	1,71	0,94	1,90	79	1,215
340	5,05	1,00	1,94	77	1,105
370	10,40	1,13	2,0	75	1,065
410	20,77	1,46	2,2	68	1,032
430	28,3	1,88	2,3	60	1,019
438	31,8	1,96	2,7	56	1,013

к увеличению нагрузки с ростом температуры. При этом увеличение плотности орошения обусловливало возрастание ВЭТТ более быстро, чем конкурирующее влияние на ВЭТТ самой температуры процесса.

Полученная на колонне зависимость коэффициента обогащения от температуры представлена на рис. 2. Поскольку  $\varepsilon$  определяется выражением  $\varepsilon = h \ln q_0 / H$  (где  $h = \text{ВЭТТ}$ , а  $H$  — высота колонны), абсолютная погрешность  $\Delta\varepsilon$  вычислялась по формуле

$$\Delta\varepsilon = \frac{\ln q_0}{H} \Delta h + \frac{h \ln q_0}{H^2} \Delta H + \frac{h}{H q_0} \Delta q_0. \quad (4)$$

Во всей области измерений  $\Delta\varepsilon$  не превышало  $\pm 0,0005$ .

**Обсуждение результатов.** Как видно из рис. 2, результаты двух методов достаточно хорошо совпадают. Кроме того, в области нормальной температуры кипения  $\text{BCl}_3$  оба метода дали результаты, близкие к данным других авторов, что также говорит о правильности использованных методик,

в том числе и новой методики оценки  $\varepsilon$  по расчетному значению ВЭТТ. Однако если даже отвлечься от оценки  $\varepsilon$ , то зависимость равновесного фактора разделения, полученная на колонне, однозначно указывает на ухудшение разделения с ростом температуры и на практическое исчезновение разделительного эффекта при температуре, близкой к критической. Этот вывод справедлив, несмотря на большую относительную погрешность в области, близкой к критической температуре.

Полученная зависимость коэффициента обогащения от температуры свидетельствует о нецелесообразности использования метода ректификации  $\text{BCl}_3$  для производства изотопов бора.

### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Green M., Martin G. «Trans. Faraday Soc.», 1952, v. 48, № 353, p. 416.
2. Muhlenpfordt F. e. a. In: Proc. Intern. Symp. Isotope Separation. Amsterdam, 1958, p. 408.
3. Кац М. Я., Кукавадзе Г. М., Сердюк Р. Л. «ЖТФ», 1956, т. 26, № 12, с. 2744.
4. Севрюгова Н. Н., Уваров О. В., Жаворонков Н. М. «Атомная энергия», 1956, № 4, с. 113.
5. Розен А. М. Теория разделения изотопов в колоннах. М., Атомиздат, 1960.
6. Борисов А. В. Канд. дис., М., МГУ, 1966.
7. Голубев И. Ф., Гнездилов Н. Е. Вязкость газовых смесей. М., изд. Госкомитета стандартов, 1971.
8. Каминский В. А., Гиоргадзе Н. А. «Isotopenpraxis», 1973, Bd 9, № 1, S. 1.
9. Каминский В. А., Гиоргадзе Н. А. Ibid., 1978, Bd 14, N 9, S. 321.
10. Каминский В. А., Гиоргадзе Н. А. «Журн. прикладной химии», 1978, т. 51, № 10, с. 2266.
11. Гиршфельдер Д., Кертисе Ч., Берд Р. Молекулярная теория газов и жидкостей. М., Изд-во иностр. лит., 1961.

Поступила в Редакцию 26.06.79  
В окончательной редакции 24.01.80

УДК 543.53

## Возможности протонно-активационного анализа при определении содержания элементов по короткоживущим радионуклидам

МУМИНОВ В. А., МУХАММЕДОВ С., ВАСИДОВ А.

Метод протонно-активационного анализа используют при определении примесей в материалах, по своим ядерно-физическим свойствам не подходящих для инструментального нейтронно-активационного анализа [1—3] и для исследования элементного состава отдельных участков образцов [4]. При многоэлементном анализе главным образом применяют относительно долгоживущие радионуклиды [5—7]. На основе ядерных реакций, в результате которых образуются радионуклиды с периодом полураспада  $T_{1/2} < 1000$  с, можно разработать высокочувствительные, экспрессные методы активационного анализа на заряженных

частицах. Однако до сих пор число работ, посвященных исследованию методов определения элементов по короткоживущим радионуклидам невелико.

В публикации [8] показаны возможности определения восьми элементов с  $Z \geq 34$  в 13 матрицах по активным продуктам реакций с  $1 \leq T_{1/2} \leq 60$  с. Для определения концентрации элементов  $10^{-7} - 10^{-10}$  г/г чаще применяют радионуклиды с  $T_{1/2} > 1$  мин [9]. Разработаны экспрессные методы определения азота [10—12], углерода, магния, кремня [13], серы [14—15]. Тем не менее до сих пор очень мало работ, посвященных



Выходы  $\gamma$ -квантов  $Y_\gamma$  [ $10^6$  квант/(с·мкА)] и чувствительность определения элементов при  $E_p = 10$  МэВ [ $10^{-9}$  г/(г·мкА $^{-1}$ )]

Определяемые элементы и продукты реакций	Энергия и интенсивность кванта	$Y_\gamma$						Чувствительность анализа *	
		$E_p$ , МэВ							
		6	7	8	9	10	11		12
$^{10}\text{B} \rightarrow ^{10}\text{C}$	0,718(100)			1,6	3,3	6,3	9,8	15,2	2600
$^{13}\text{C} \rightarrow ^{13}\text{N}$	0,510(200)	150	270	340	400	430	470	500	3,70
$^{14}\text{N} \rightarrow ^{11}\text{C}$	0,510(200)	480	720	1760	2560	3400	4160	5000	0,5
$^{14}\text{N} \rightarrow ^{14}\text{O}$	2,312(99)			197	410	650	950	1144	2,5
$^{16}\text{O} \rightarrow ^{13}\text{N}$	0,510(200)		480	960	1400	1800	2200	2600	0,9
$^{23}\text{Na} \rightarrow ^{23}\text{Mg}$	0,439(9,4)	11	30	42	64	100	130	174	160
$^{52}\text{Cr} \rightarrow ^{52m}\text{Mn}$	1,434(98)		42	910	2100	3480	5200	7120	0,5
$^{60}\text{Ni} \rightarrow ^{60}\text{Cu}$	1,332(88)		42	92	183	325	570	935	5,1
$^{64}\text{Zn} \rightarrow ^{64}\text{Ga}$	0,991(43)					21	40	65	79
$^{80}\text{Se} \rightarrow ^{80}\text{Br}$	0,612(7)	91	136	176	214	250	280	308	6,6
$^{79}\text{Br} \rightarrow ^{79m}\text{Kr}$	0,127(30)	5,5	15	28	44	66	97	134	250
$^{81}\text{Br} \rightarrow ^{81m}\text{Kr}$	0,190(65)		6	21	46	78	110	147	200
$^{89}\text{Y} \rightarrow ^{89m}\text{Zr}$	0,578(100)			80	180	300	440	595	5,5
$^{90}\text{Zr} \rightarrow ^{90m}\text{Nb}$	0,1225(71)				16	38	68		420
$^{92}\text{Mo} \rightarrow ^{92}\text{Tc}$	0,773(97)					0,6	30	68	760
$^{112}\text{Cd} \rightarrow ^{112}\text{In}$	0,6171(27,6)			39,6	88	139	198	260	12
$^{116}\text{Sn} \rightarrow ^{116}\text{Sb}$	1,293(88)	4,0	9,5	16,8	25	35	41	59	47
$^{118}\text{Sn} \rightarrow ^{118}\text{Sb}$	1,230(100)			9,8	14	18,6	24	29,0	89
$^{120}\text{Sn} \rightarrow ^{120}\text{Sb}$	1,171(2)			6,8	10,8	14,4	17,4	21,5	110
$^{134}\text{Ba} \rightarrow ^{134}\text{La}$	0,6049(100)			0,1	0,3	0,6	1,2	2,1	2600
$^{136}\text{Ba} \rightarrow ^{136}\text{La}$	0,8185(2,5)			0,1	0,3	0,5	1,1	2,1	3200
$^{139}\text{La} \rightarrow ^{139m}\text{Ce}$	0,754(93)			9,2		43	78	128	370
$^{141}\text{Pr} \rightarrow ^{141m}\text{Nd}$	0,755(92)				0,2	18	25	75	89
$^{142}\text{Nd} \rightarrow ^{142}\text{Pm}$	1,575(3,3)			0,1	0,3	0,6	1,2	2,0	2600
$^{180}\text{W} \rightarrow ^{180}\text{Re}$	0,902(99,4)					0,6	2,0	4,8	2670

\* Чувствительность выражена как количество определяемого элемента в 1 г вещества, при облучении которого образуется радионуклид активностью 1000  $\gamma$ -квант/мин ( $T_{1/2} \leq 1$  мин) и 100  $\gamma$ -квант/мин ( $T_{1/2} > 1$  мин).

исследованию возможностей определения элементов с использованием радионуклидов с  $T_{1/2} = 10-1000$  с, возникающих в реакциях на протонах.

Нами ранее оценена чувствительность определения протонно-активационным методом серы, хрома, никеля, меди, цинка, молибдена, которая сравнивалась с чувствительностью других ядерно-физических методов [16]. В настоящей статье путем измерения выходов  $\gamma$ -квантов мы оцениваем возможность определения 20 элементов активацией протонами энергией  $E_p = 12$  МэВ, а также приводим результаты исследования неструктивных, экспрессных и избирательных методов анализа.

На нуклиде с наибольшей природной распространенностью реакция имеет большое сечение и при этом индуцируется радионуклид с  $T_{1/2} > 1000$  с. Здесь мы не рассматриваем нуклиды с природной распространенностью менее 1%, радионуклиды с относительной интенсивностью  $\gamma$ -квантов менее 1%, а также элементы, которые в реакциях с протонами не образуют радионуклиды с  $T_{1/2} = 10 \div 1000$  с. В результате выбраны реакции, указанные в табл. 1. Определение названных

элементов методами протонно-активационного анализа представляет значительный интерес, так как определение их другими ядерно-физическими методами связано с большими трудностями из-за неблагоприятных активационных характеристик реакций. Поэтому мы в настоящей работе сравниваем аналитические параметры различных ядерно-физических методов.

**Техника эксперимента.** В экспериментах использовали 150-сантиметровый циклотрон ИЯФ АН УзССР, ускоряющий протоны до энергии 18 МэВ. Образцы облучали с помощью полуавтоматической установки, оснащенной пневмопочтой (рис. 1). Образец в мишенедержателе из дюралюминия по полиэтиленовой гибкой трубе под действием сжатого воздуха доставлялся к позиции облучения. Мишенедержатель останавливался в маленькой камере, отгороженной от основной тонкой никелевой фольгой (~20 мкм). Центр цилиндрического мишенедержателя совпадал с центром коллиматора диаметром 10 мм. Первый под действием сжатого воздуха прижимался к резиновому уплотнителю и концевому выключателю, останавливающему подачу сжатого воздуха. Пучок предвари-



тельно принимался на охлаждаемую «шторку», которая после поступления мишенедержателя по команде от концевого выключателя открывалась электродвигателем и начиналось облучение образца. Время экспозиции задавали с помощью реле. Маленькую камеру от большой изолировали фарфоровым цилиндром Фарадея. После облучения образцов шторка закрывалась, и мишенедержатель сжатым воздухом отпирался на позицию измерения радиоактивности. Время доставки образцов в измерительную комнату, находящуюся на расстоянии 15 м, составляло 1—5 с. За шторкой со стороны образца на оси двигателя устанавливали барабан с 12 отверстиями для набора поглотителей. Энергию протонов снижали с помощью алюминиевых адсорберов. Ввиду того что при энергии протонов >12 МэВ велико число interfering реакций типа  $(p, 2n)$ ,  $(p, 3n)$ ,  $(p, pn)$ ,  $(p, d)$  и др., эту энергию выбрали в качестве оптимальной. Заряд цилиндра Фарадея измеряли интегратором тока.

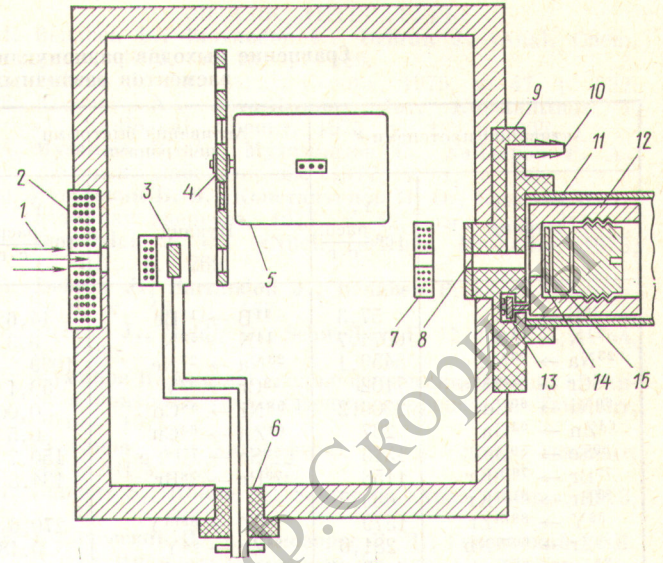
Мишенями служили различные соединения исследуемых элементов марки ЧДА, которые на поверхности фольги склеивали липкой суспензией полистирола, растворенного дихлорэтаном [9]. Такая пленка выдерживает облучение пучком протонов 0,01—0,3 мкА в течение 5—20 с.

Активность радионуклидов измеряли с помощью полупроводникового Ge(Li)-детектора рабочим объемом 90 см<sup>3</sup>, подключенного к многоканальному анализатору АИ-4096. Энергетическое разрешение детектора не хуже 9 кэВ по линии 1330 кэВ <sup>60</sup>Со. Память анализатора разбивали на 16 групп по 256 каналов, информацию в последующие группы набирали по мере заполнения начальных. Поэтому можно было измерить активность 16 мишеней, что облегчало работу с короткоживущими радионуклидами. Детектор был энергетически проградуирован, а относительная эффективность измерена с помощью прецизионных источников  $\gamma$ -квантов.

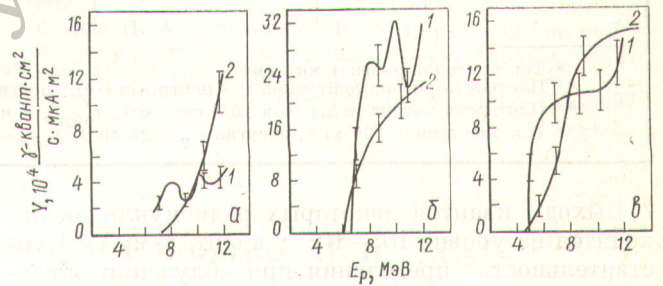
**Обсуждение результатов.** В зависимости от периода полураспада нуклида пленки облучали либо отдельно по одной, либо по несколько штук вместе, складывая их в стопку. Выход квантов из тонких мишеней находили, используя соотношение

$$Y_{\gamma}[E_p] = St_{\text{обл}} e^{\lambda t_{\text{охл}}} / [t_{\text{изм}} f \epsilon q \Delta x (1 - e^{-\lambda t_{\text{обл}}}) \times (1 - e^{-\lambda t_{\text{изм}}})] [\gamma\text{-квант} \cdot \text{см}^2 / (\text{с} \cdot \text{мкА} \cdot \text{мг})], \quad (1)$$

где  $S$  — площадь фотопика, имп.;  $t_{\text{обл}}$ ,  $t_{\text{изм}}$ ,  $t_{\text{охл}}$  — соответственно время облучения, измерения радиоактивности и охлаждения образцов после облучения, с;  $\epsilon$  — эффективность детектора;  $f$  — массовая доля исследуемого элемента в мишени;  $\Delta x$  — толщина мишени, мг/см<sup>2</sup>;  $q$  — накопленный заряд, мкКл;  $\lambda$  — постоянная распада, с<sup>-1</sup>; суммирование выходов из тонких мишеней



Р и с. 1. Схема установки с пневмопочтой для облучения образцов на циклотроне: 1 — пучок протонов; 2, 7 — графитовые коллиматоры; 3 — охлаждаемая шторка для переключения и измерения тока; 4 — барабан с поглотителями; 5 — мотор; 6 — изоляционное кольцо; 8 — никелевая фольга; 9 — фланец; 10 — труба для подачи сжатого воздуха; 11 — полиэтиленовая труба-пневмопочта; 12 — мишенедержатель; 13 — конечный выключатель; 14 — монитор; 15 — образец



Р и с. 2. Выходы из тонких мишеней некоторых радионуклидов, образующихся по реакциям  $(p, n)$ : а — 1 ( $\times 4$ ) — <sup>10</sup>C; 2 ( $\times 0,2$ ) — <sup>134</sup>Ba  $\rightarrow$  <sup>134</sup>La; б — 1 — <sup>14</sup>N  $\rightarrow$  <sup>14</sup>O; 2 — <sup>52</sup>Cr  $\rightarrow$  <sup>52m</sup>Mn; в — 1 — <sup>23</sup>Na  $\rightarrow$  <sup>23</sup>Mg; 2 — <sup>112</sup>Cd  $\rightarrow$  <sup>112</sup>In

в интервале толщины — разности пробегов, соответствующих начальной энергии протонов и пробегу реакции, дает выход  $\gamma$ -кванта для толстой мишени:

$$Y_{\gamma} = \sum^R Y_{\gamma}[E_p] \Delta x [\gamma\text{-квант} / (\text{с} \cdot \text{мкА})], \quad (2)$$

где  $R$  — пробег частицы, мг/см<sup>2</sup>. Зависимости  $Y_{\gamma}$  от энергии протонов строили с использованием таблиц «пробег — энергия» [17].

На рис. 2 показаны выходы  $\gamma$ -квантов из тонких мишеней. В табл. 1 приведены выходы наиболее интенсивных  $\gamma$ -квантов из толстых мишеней для диапазона энергии протонов 6—12 МэВ. Там же указана чувствительность определения элементов при  $E_p = 10$  МэВ.



Сравнение выходов радионуклидов, образующихся при активации элементов различными ядерными частицами

Активация протонами *		Активация быстрыми нейтронами **		Активация тепловыми нейтронами ***		Активация $\gamma$ -квантами ****	
Нуклид	Y, $10^6$ расп./с·г	Нуклид	Y, $10^6$ расп./с·г	Нуклид	Y, $10^6$ расп./с·г	Нуклид	Y, $10^6$ расп./с·г
$^{10}\text{B} \rightarrow ^{10}\text{C}$	57,3	$^{11}\text{B} \rightarrow ^{11}\text{Be}$	14,6			$^{14}\text{N} \rightarrow ^{13}\text{N}$	70
$^{14}\text{N} \rightarrow ^{14}\text{O}$	6074,7	$^{14}\text{N} \rightarrow ^{13}\text{N}$	6,3			$^{23}\text{Na} \rightarrow ^{22}\text{Na}$	0,0009
$^{23}\text{Na} \rightarrow ^{23}\text{Mg}$	8459,1	$^{23}\text{Na} \rightarrow ^{23}\text{Ne}$	1099	$^{23}\text{Na} \rightarrow ^{24}\text{Na}$	6640	$^{50}\text{Cr} \rightarrow ^{49}\text{Cr}$	2
$^{52}\text{Cr} \rightarrow ^{52m}\text{Mn}$	7102	$^{52}\text{Cr} \rightarrow ^{52}\text{V}$	59,1	$^{50}\text{Cr} \rightarrow ^{51}\text{Cr}$	82,4	$^{58}\text{Ni} \rightarrow ^{57}\text{Ni}$	0,3
$^{60}\text{Ni} \rightarrow ^{60}\text{Cu}$	2306,2	$^{58}\text{Ni} \rightarrow ^{58}\text{Co}$	0,007	$^{64}\text{Ni} \rightarrow ^{65}\text{Ni}$	428	$^{64}\text{Zn} \rightarrow ^{63}\text{Zn}$	50
$^{64}\text{Zn} \rightarrow ^{64}\text{Ga}$	287	$^{64}\text{Zn} \rightarrow ^{64}\text{Cu}$	0,5	$^{68}\text{Zn} \rightarrow ^{69m}\text{Zn}$	75,4		
$^{80}\text{Se} \rightarrow ^{80}\text{Br}$	1316	$^{78}\text{Se} \rightarrow ^{77m}\text{Se}$	150,7	$^{80}\text{Se} \rightarrow ^{81}\text{Se}$	16900		
$^{79}\text{Br} \rightarrow ^{79m}\text{Kr}$	1158	$^{79}\text{Br} \rightarrow ^{78}\text{Br}$	134,8	$^{79}\text{Br} \rightarrow ^{80}\text{Br}$	293000	$^{79}\text{Br} \rightarrow ^{78}\text{Br}$	500
$^{81}\text{Br} \rightarrow ^{81m}\text{Kr}$	639,5						
$^{89}\text{Y} \rightarrow ^{89m}\text{Zr}$	1579	$^{89}\text{Y} \rightarrow ^{89m}\text{Y}$	270,6	$^{89}\text{Y} \rightarrow ^{90}\text{Y}$	932	$^{89}\text{Y} \rightarrow ^{88}\text{Y}$	0,04
$^{90}\text{Zr} \rightarrow ^{90m}\text{Nb}$	281,6	$^{94}\text{Zr} \rightarrow ^{94}\text{Y}$	0,48	$^{96}\text{Zr} \rightarrow ^{97}\text{Zr}$	3,7	$^{90}\text{Zr} \rightarrow ^{89}\text{Zr}$	0,7
$^{92}\text{Mo} \rightarrow ^{92}\text{Tc}$	3,21	$^{92}\text{Mo} \rightarrow ^{91}\text{Mo}$	4,98	$^{100}\text{Mo} \rightarrow ^{101}\text{Mo}$	11,3	$^{92}\text{Mo} \rightarrow ^{91}\text{Mo}$	20
$^{112}\text{Cd} \rightarrow ^{112}\text{In}$	2451,4	$^{111}\text{Cd} \rightarrow ^{111m}\text{Cd}$	0,79	$^{110}\text{Cd} \rightarrow ^{111m}\text{Cd}$	3,81	$^{114}\text{Cd} \rightarrow ^{113}\text{Ag}$	0,1
$^{116}\text{Sn} \rightarrow ^{116}\text{Sb}$	180,4						
$^{118}\text{Sn} \rightarrow ^{118}\text{Sb}$	80,8	$^{124}\text{Sn} \rightarrow ^{123}\text{Sn}$	2,4	$^{124}\text{Sn} \rightarrow ^{125}\text{Sn}$	0,037	$^{112}\text{Sn} \rightarrow ^{111}\text{Sn}$	3
$^{120}\text{Sn} \rightarrow ^{120}\text{Sb}$	3130,4	$^{138}\text{Ba} \rightarrow ^{137m}\text{Ba}$	289,2	$^{138}\text{Ba} \rightarrow ^{139}\text{Ba}$	42,6		
$^{134}\text{Ba} \rightarrow ^{134}\text{La}$	2,8						
$^{136}\text{Ba} \rightarrow ^{136}\text{La}$	88,3						
$^{139}\text{La} \rightarrow ^{139m}\text{Ce}$	200,9	$^{141}\text{Pr} \rightarrow ^{140}\text{Pr}$	574,1	$^{139}\text{La} \rightarrow ^{140}\text{La}$	6450	$^{141}\text{Pr} \rightarrow ^{140}\text{Pr}$	1000
$^{141}\text{Pr} \rightarrow ^{141m}\text{Nd}$	84,8	$^{186}\text{W} \rightarrow ^{185m}\text{W}$	43,6	$^{141}\text{Pr} \rightarrow ^{142}\text{Pr}$	15100	$^{142}\text{Nd} \rightarrow ^{141}\text{Nd}$	20
$^{142}\text{Nd} \rightarrow ^{142}\text{Pm}$	79,2			$^{150}\text{Nd} \rightarrow ^{151}\text{Nd}$	3200	$^{186}\text{W} \rightarrow ^{185}\text{W}$	0,05
$^{180}\text{W} \rightarrow ^{180}\text{Re}$	3,4			$^{186}\text{W} \rightarrow ^{187}\text{W}$	9790		

\* Ток протонов равен 1 мкА/см<sup>2</sup>.\*\* Плотность потока нейтронов  $10^9$  нейтр./(см<sup>2</sup>·с), энергия 14 МэВ,  $t_{\text{обл}} = 5$  мин [18].\*\*\* Плотность потока нейтронов  $10^{13}$  см<sup>-2</sup>·с<sup>-1</sup>,  $t_{\text{обл}} = 1$  ч [18].\*\*\*\* Ток электронов 100 мкА, энергия  $E_{\gamma} = 25$  МэВ,  $t_{\text{обл}} = 10$  мин [19].

Выходы квантов некоторых радионуклидов находятся на уровне  $10^7$ – $10^{10}$   $\gamma$ -квант/(с·мкА). Чувствительность определения при облучении образцов до насыщения током пучка протонов в 1 мкА, равная  $(2670 - 0,5) \cdot 10^{-9}$  г/(г·мкА<sup>-1</sup>), достигается в тех случаях, когда под действием протонов матрица не активируется (Li, Be, B, Al, Mn, Co, Eu, Ta, Bi и др.) или от нее не образуются радионуклиды с короткими периодами полураспада и когда концентрация других примесей ниже  $10^{-7}$  г/г (что не оказывает заметного влияния на анализ). Во всех остальных случаях в зависимости от выхода радионуклидов, от основы и примесей чувствительность неструктурного активационного анализа может колебаться в пределах  $10^{-3}$ – $10^{-7}$  г/(г·мкА<sup>-1</sup>). Чувствительность определения хрома, азота, никеля, селена, иттрия, кадмия, прометия составляет  $5 \cdot 10^{-10}$ – $4 \cdot 10^{-7}$  г/(г·мкА<sup>-1</sup>), а других элементов не хуже  $2 \cdot 10^{-5}$  г/(г·мкА<sup>-1</sup>).

В связи с конкретным применением различных ядерно-физических методов в элементном анализе практический интерес представляет сравнение выходов радионуклидов, возникающих при активации

элементов протонами, тепловыми и быстрыми нейтронами,  $\gamma$ -квантами высокой энергии. В табл. 2 приведены радионуклиды, имеющие наибольшие выходы при активации проникающим излучением. Как видно, выходы радионуклидов, возникающих при активации образца протонами, всегда в  $10$ – $10^8$  раз выше выхода активных продуктов реакций на быстрых нейтронах. А при активации элементов тепловыми нейтронами главным образом образуются долгоживущие радионуклиды, выходы которых близки к выходам нуклидов, получающихся при активации протонами. Высокие выходы имеют натрий, селен, бром, барий, неодим, вольфрам. Если при активации используются  $\gamma$ -кванты, то выходы продуктов фотоядерных реакций на Mo, Br, Pr выше в 2–10 раз, а во всех остальных случаях ниже в  $10$ – $1000$  раз выхода радионуклидов, образующихся по ядерным реакциям на протонах.

Из сказанного следует, что кратковременным облучением образцов при высокой интенсивности пучка протонов можно определять содержание большинства из исследованной группы элементов с пределом обнаружения  $10^{-5}$ – $10^{-8}$  %.



Таким образом мы показали, что протонно-активационный анализ по короткоживущим продуктам ядерных реакций обладает следующими преимуществами перед другими методами анализа:

чувствительность определения элементов составляет  $(2670 - 0,5) \cdot 10^{-9}$  г/(г·мкА<sup>-1</sup>), что в большинстве случаев в 10—1000 раз выше чувствительности других методов. При использовании больших потоков протонов (выше 1 мкА) этот предел можно понизить;

методы неdestructивны, экспрессны и стоимость определения одного элемента ниже стоимости анализа по долгоживущим радионуклидам, так как время, требуемое для облучения образца, в первом случае намного меньше;

возможность неdestructивного анализа матриц, имеющих большие сечения активации на тепловых, быстрых нейтронах и  $\gamma$ -квантах;

определение содержания элементов, которые из-за интерференций с помощью других ядерных реакций не определяются;

возможность для многоциклического анализа и его автоматизации.

Однако методы имеют и некоторые ограничения, заключающиеся в трудности подавления фона от более долгоживущих радионуклидов (особенно, когда их число велико) и комптоновского распределения от аннигиляционных квантов с постоянной высокой интенсивностью, так как почти все радионуклиды распадаются путем излучения  $\beta^+$ -частиц.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Benaben P., Barrandon I., Debrun J. «Anal. Chem. Acta», 1975, v. 78, p. 129.
2. Debrun J. e.a. «Anal. Chem.», 1975, v. 47, p. 637.
3. Krasnov N., Sevasthyanov Ju., Konstantinov I. «J. Radioanal. Chem.», 1973, v. 16, p. 395.
4. Мунинов В. А., Мухаммедов С., Хайдаров Р. А. «Заводск. лаборатория», 1977, т. 1. с. 40.
5. Затолокин Б. В., Константинов И. О., Краснов Н. Н. «Атомная энергия», 1977, т. 42, вып. 4, с. 311.
6. Barrandon J. e.a. «Nucl. Instrum. Methods», 1975, v. 127, p. 269.
7. Debrun J., Barrandon J., Benaben P. «Anal. Chem.», 1976, v. 48, p. 167.
8. Debrun J., Riddle D., Schweikert E. Ibid., 1977, v. 44, p. 1386.
9. Мунинов В. А. и др. Ядерно-физические методы анализа и контроля технологических процессов. Ташкент, «Фан», 1974, с. 50.
10. Султанов Б. Автореферат канд. дис. Ташкент, ИЯФ АН УзССР, 1977.
11. Bankert S., Bloom S., Sauter G. «Anal. Chem.», 1973, v. 45, p. 692.
12. Козачевский И. В., Кнозоров В. Д., Сокольский В. В. В кн.: Прикладная ядерная физика. Кн. 2. Ташкент, «Фан», 1973, с. 123.
13. McGinly I., Schweikert E. «Anal. Chem.», 1975, v. 47, p. 2403.
14. Burton T., Swindle D., Schweikert E. «Radiochem. Radioanal. Lett.», 1972, v. 9, p. 155.
15. Thomas I., Schweikert E. «Nucl. Instrum. Methods», 1972, v. 9, p. 461.
16. Мунинов В. А., Мухаммедов С., Хайдаров Р. А. «Изотопы в СССР», 1977, т. 49, с. 11.
17. Williamson C., Boujot I., Picard I. Rep. CEA-3042, 1966.
18. Маслов И. А., Лукницкий В. А. Справочник по нейтронному активационному анализу. Л., «Наука», 1971.
19. Lutz G. «Anal. Chem.», 1969, v. 41, p. 424.

Поступила в Редакцию 28.09.97

УДК 551.464.6.02

## Пространственное распределение и баланс <sup>3</sup>H и <sup>137</sup>Cs в Черном море в 1977 г.

ВАКУЛОВСКИЙ С. М., КАТРИЧ И. Ю., КРАСНОПЕВЦЕВ Ю. В., НИКИТИН А. И., ЧУМИЧЕВ В. Б., ШКУРО В. Н.

Исследования поведения радиоактивных примесей в морской среде в первую очередь направлены на обеспечение радиационной безопасности человека и сохранение природных ресурсов океана. При этом следует уделять особое внимание изучению радиоактивной загрязненности морей с ограниченным водообменом, к которым принадлежит, в частности, Черное море, так как этот тип морей наиболее чувствителен к техногенным загрязнениям.

В настоящее время содержание <sup>90</sup>Sr в водах Черного моря изучено достаточно хорошо [1—5]. Оценка же запасов <sup>137</sup>Cs проведена на ограниченном экспериментальном материале [2, 3]. Нет опубликованных сведений о содержании <sup>137</sup>Cs в донных отложениях Черного моря и о запасах составляющих баланса трития.

Для получения более подробных данных о радиоактивной загрязненности Черного моря в сентябре — октябре 1977 г. во время рейса НИС «Мгла» был проведен отбор проб морской воды и донных отложений. Пробы воды отбирали батом тром из нержавеющей стали, а пробы донных отложений — дночерпателем «Океан-0,25». Для определения <sup>3</sup>H объем пробы составлял 2 л, для <sup>137</sup>Cs — 100 л. Радиометрию <sup>3</sup>H в пробах воды проводили с помощью жидкости сцинтилляционных спектрометров «Mark-II» и SL-30 после предварительного обогащения методом электролиза [6]. При этом погрешность измерения минимальной активности не превышала 35%. При определении <sup>137</sup>Cs пробы воды пропускались через колонку с избирательным сорбентом [7] на борту судна. Степень извлечения цезия составляла 80%. Измерение проб