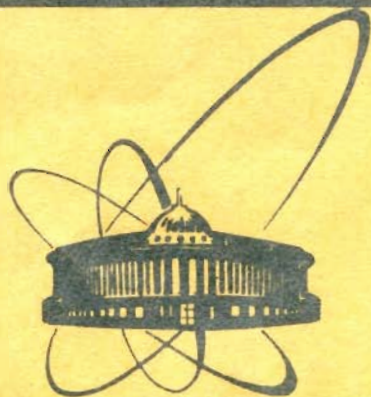


12210



сообщения  
объединенного  
института  
ядерных  
исследований

дубна

868 / 2-80

25 / 2-80  
18 - 12210

О.Д.Маслов, Ю.Г.Тетерев, Л.П.Кулькина, А.Г.Белов,  
Т.В.Базаркина

ПРИМЕНЕНИЕ ФОТОНЕЙТРОНОВ МИКРОТРОНА  
ДЛЯ ИНСТРУМЕНТАЛЬНОГО  
АКТИВАЦИОННОГО ОПРЕДЕЛЕНИЯ УРАНА

1979

18 - 12210

**О.Д.Маслов, Ю.Г.Тетерев, Л.П.Кулькина, А.Г.Белов,  
Т.В.Базаркина**

**ПРИМЕНЕНИЕ ФОТОНЕЙТРОНОВ МИКРОТРОНА  
ДЛЯ ИНСТРУМЕНТАЛЬНОГО  
АКТИВАЦИОННОГО ОПРЕДЕЛЕНИЯ УРАНА**

Применение фотонейтронов микротрона для инструментального активационного определения урана

Исследовано применение фотонейтронов микротрона для инструментального активационного определения урана в объектах сложного химического состава. Плотность потока резонансных нейтронов в зоне активации образцов равнялась  $2 \cdot 10^7$  н/см<sup>2</sup>с. При анализе урана по изотопу <sup>239</sup>U использовались образцы весом  $1 \pm 10$  г, по изотопу <sup>239</sup>Np - 80 г. Количественное определение осуществлялось по фотопикам U с энергией 44, 74,7 кэВ и <sup>239</sup>Np - с энергией 106 кэВ. Приведены результаты анализа образцов сложного химического состава. Показано, что чувствительность определения содержания урана по изотопу <sup>239</sup>U равна  $1 \cdot 10^{-7}$  г/г, по изотопу <sup>239</sup>Np -  $1 \cdot 10^{-6}$  г/г при использовании для регистрации этих нуклидов Ge-детектора с разрешением 500 эВ по фотопику  $E_{\gamma} = 74,7$  кэВ.

Работа выполнена в Лаборатории ядерных реакций ОИЯИ.

Сообщение Объединенного института ядерных исследований. Дубна 1979

Application of a Photoneutron Microtron for  
Nondestructive Activation Determination of Uranium

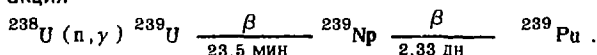
The application of a photoneutron microtron for a nondestructive activation determination of uranium has been investigated in samples of the compound chemical composition. The resonance neutron flux was  $2 \cdot 10^7$  n/cm<sup>2</sup>s<sup>-1</sup> in the activation zone. For the analysis of uranium by the <sup>239</sup>U isotope samples of  $1 \pm 10$  g, by <sup>239</sup>Np - 80 g of weight were used. A quantitative determination was made by a photopeak of analytical lines of  $\gamma$ -rays <sup>239</sup>U - with 44 and 74,7 keV energy, and of <sup>239</sup>Np - with 106 keV energy. The results of analysing samples of a compound chemical composition are given. It is shown that the sensitivity of uranium determination by <sup>239</sup>U isotope is  $1 \cdot 10^{-7}$  g/g, by <sup>239</sup>Np isotope -  $1 \cdot 10^{-6}$  g/g. For the measurements a semiconductor Ge-detector was used with 500 eV resolution for a photopeak  $E_{\gamma} = 74.7$  keV.

The investigation has been performed at the Laboratory of Nuclear Reactions, JINR.

Communication of the Joint Institute for Nuclear Research. Dubna 1979

Прогресс в инструментальных ядерно-физических методах анализа, в частности определения урана, связан с развитием новых способов получения нейтронных потоков и использованием гамма-спектрометрии высокого разрешения для образцов сложного химического состава, что позволяет избежать ошибок, связанных с радиохимическим выделением элементов<sup>/1-5/</sup>, и способствует значительному снижению трудоемкости проведения анализа. Кроме того, селективность определения элементов, имеющих достаточно высокие резонансные интегралы активации, заметно повышается при применении надтепловых нейтронов<sup>/6/</sup>. Для ядер урана-238 величина резонансного интеграла поглощения нейтронов во много раз превышает сечение поглощения тепловых нейтронов,  $I_U/\sigma_T = 100$ , что позволяет производить инструментальное определение урана в различных образцах с чувствительностью  $1 \cdot 10^{-7}$  г/г<sup>/7/</sup>.

В нейтронно-активационном анализе урана используется реакция



Уран идентифицируется путем регистрации гамма-излучения  ${}^{239}\text{U}$  с  $E_\gamma = 44, 75$  кэВ<sup>/7,8/</sup> или  ${}^{239}\text{Np}$  с  $E_\gamma = 106$ <sup>/8,9/</sup>, 209, 228<sup>/8,10/</sup>, 278<sup>/8,10/</sup> кэВ. Обычно активация урана производится нейтронами реактора.

В данной работе исследовалось инструментальное определение содержания урана в образцах сложного химического состава активацией фотонейтронами микротрона.

## ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ

Для активации исследуемых образцов с целью определения в них урана использовались фотонейтроны микротрона Лаборатории ядерных реакций<sup>/11/</sup>, получаемые в результате  $\gamma$ -д реакции на мишени, состоящей из урана и бериллия и помещенной в замедлитель - графит.

Энергия фотонов равнялась 16,0 МэВ, ток микротрона - 20 мкА. Плотность потока резонансных нейтронов в зоне активации образцов равнялась  $2 \cdot 10^7 \frac{n}{\text{см}^2 \cdot \text{с}}$ .

При анализе урана по изотопу  $^{239}\text{U}$  образцы весом от 1 до 10 г упаковывались в полиэтилен. Облучение образцов, экранированных кадмием толщиной 1 мм, производилось в течение 23-47 минут. Затем образцы помещались в стеклянный цилиндр  $\phi$  25 мм с дном из лавсановой пленки толщиной 8 мкм для получения постоянной геометрии при измерении в них наведенной активности. Измерения проводились после 5-8-минутной выдержки с помощью Ge-детектора объемом  $2,1 \text{ см}^3$  и энергетическим разрешением 500 эВ на  $E_{\gamma} = 74,7 \text{ кэВ}$ . Время измерения составляло 23 мин. Количественное определение урана проводилось по фотопику изотопа  $^{239}\text{U}$  с энергией 74,7 кэВ.

При определении урана по изотопу  $^{239}\text{Np}$  использовались навески образцов до 80 г, помещенные в полиэтиленовые кассеты  $\phi$  60 мм и высотой 18 мм, экранированные кадмием. Облучение производилось в течение 10 часов, и после 24-48-часовой выдержки измерялась наведенная активность. Количественное определение осуществлялось по фотопику изотопа  $^{239}\text{Np}$  с энергией 106 кэВ.

Так как исследуемые образцы имели переменный состав в широком диапазоне концентраций элементов основы, определение урана проводилось с помощью эталонирования по методу добавок, т.е. в исследуемые образцы вносилось от 1 до 10 мкг урана в виде аликвоты раствора азотнокислого уранила.

## РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

В таблице даны некоторые результаты анализа урана в исследованных образцах, а на рис. 1, 2 - гамма-спектры некоторых из них.

На рис. 1а показан гамма-спектр ионообменной смолы, содержащей  $5 \cdot 10^{-7}$  г/г урана. Фотопик урана с энергией 74,7 кэВ свободен от наложений. Чувствительность определения урана по изотопу  $^{239}\text{U}$  равна  $1 \cdot 10^{-7}$  и зависит от концентрации натрия, брома, марганца, гамма-излучение которых дает сплошной спектр в области фотопика с энергией 74,7 кэВ от комптоновских рассеянных гамма-лучей. Существенный вклад в изменение чувствительности метода могут вносить радионуклиды, имеющие фотопики с энергией, близкой к 75 кэВ. К ним относятся  $^{198}\text{Os}$  ( $T_{1/2} = 13 \text{ час}$ ),  $^{191}\text{Os}$  ( $T_{1/2} = 12 \text{ дн}$ ), распад которых

Таблица

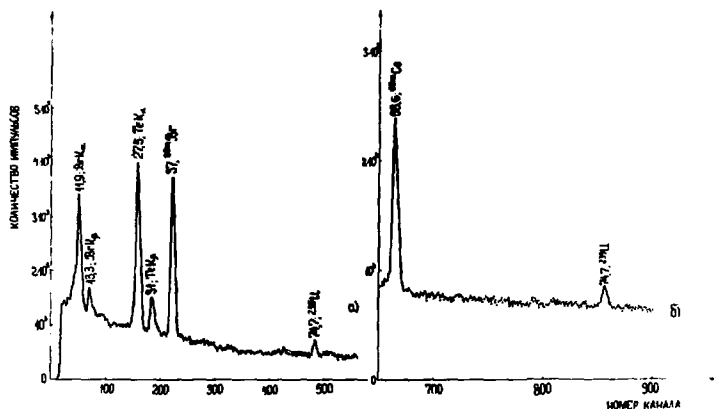
Результаты анализа содержания урана

№ п/п	Образец	Содержание урана, г/г		
		по $^{239}\text{U}$	по $^{239}\text{Np}$	трековый метод
1.	Смола ионообменная	$8 \cdot 10^{-8}$	-	$3 \cdot 10^{-8}$
2.	Железомарганцевая конкреция	$5 \cdot 10^{-6}$ $\pm 2 \cdot 10^{-7}$	$4,7 \cdot 10^{-6}$ $\pm 1 \cdot 10^{-6}$	$5 \cdot 10^{-6}$
3.	Продукты переработки конкrecий	$3 \cdot 10^{-7}$ $\pm 1 \cdot 10^{-7}$	-	$2 \cdot 10^{-7}$
4.	Геологическая порода	$9 \cdot 10^{-6}$ $\pm 4 \cdot 10^{-7}$	$1 \cdot 10^{-5}$ $\pm 8 \cdot 10^{-6}$	-

сопровождается рентгеновским излучением иридия, линия  $\text{Ir}_{K\beta_2}$  имеет энергию, равную 75,6 кэВ. Эти изотопы образуются по реакции  $(n, \gamma)$ . Кроме того, при нейтронной активации на микротроне необходимо учитывать радионуклиды, образующиеся в реакциях  $(\gamma, n)$  и  $(\gamma, \gamma')$ , такие, как  $^{197m}\text{Pt}$  ( $T_{1/2} = 80$  мин), дающая рентгеновское излучение с энергией  $E_{K\beta_1} = 75,7$  кэВ,

$^{122m}\text{Sb}$  ( $T_{1/2} = 4,2$  мин),  $^{185}\text{W}$  ( $T_{1/2} = 1,55$  мин), имеющие фотопик с энергией 75 кэВ,  $^{204m}\text{Pb}$  ( $T_{1/2} = 66,9$  мин),  $E_{K\alpha_1}$  для свинца равна 74,97 кэВ. Рентгеновские линии свинца присутствуют также в естественной цепочке радиоактивного распада  $^{228}\text{Th}$  от изотопа  $^{209}\text{Tl}$ . Влияние изотопов  $^{122m}\text{Sb}$ ,  $^{185}\text{W}$  устраняется выдержкой образцов после активации в течение 5-8 минут.

При достаточно больших содержаниях урана в пробе ( $1 \cdot 10^{-5}$  г/г) для аналитических расчетов использовался также фотопик  $^{239}\text{U}$  с энергией 44 кэВ. При этом отсутствие вклада мешающих элементов в фотопик с энергией 74,7 кэВ контролировалось по соотношению интенсивностей квантовых выходов фотопика 44 кэВ - 4%, фотопика 74,7 кэВ - 51%, а также с помощью измерений периода полураспада  $^{239}\text{U}$ .



**Рис. 1.** Гамма-спектры: а/ образца ионообменной смолы, содержащей  $5 \cdot 10^{-7}$  г/г урана; б/ образца железомарганцевой конкреции.

Вклад от гамма-излучения нуклидов, образующихся по реакциям  $(\gamma, n)$  и  $(\gamma, \gamma')$ , можно уменьшить путем экранировки активируемых образцов свинцом толщиной 50 мм. При этом вероятность образования нуклидов по реакции  $(\gamma, n)$  снижается в 20 раз, а по реакции  $(\gamma, \gamma')$  - в 2 раза за счет уменьшения потока гамма-квантов, рассеянных на конверторе нейтронов. Поток нейтронов при этом уменьшается на 20% за счет увеличения расстояния зоны активации от конвертора. Использование такой защиты полностью устраняет влияние свинца и марганца при содержании их в пробе 1 и 50% соответственно на определение урана по изотопу  $^{239}\text{U}$ . На рис. 1б представлен участок гамма-спектра конкреции, при облучении которой использовалась свинцовая защита.

При содержании свинца в образцах больше 1%, а также в концентратах осмия, иридия, сурьмы, вольфрама определение урана можно проводить только по радионуклиду  $^{239}\text{Np}$ .

На рис. 2 приведены гамма-спектры железомарганцевой конкреции, содержащей  $5 \cdot 10^{-8}$  г/г урана, измеренные с помощью разных детекторов:

а/ участок гамма-спектра, измеренного с помощью Ge -детектора с разрешением 500 эВ на фотопике  $E_{\gamma} = 74,7$  кэВ; видно, что фотопик  $^{239}\text{Np}$  с  $E_{\gamma} = 106$  кэВ свободен от вклада других радиоактивных нуклидов, а разрешение детектора четко отделяет его от энергии 103 кэВ;

б/ участок гамма-спектра, измеренного Ge(Li)-детектором объемом  $35 \text{ см}^3$  с разрешением 3,0 кэВ по фотопику  $^{137}\text{Cs}$  с  $E_{\gamma} = 0,662$  МэВ. Очевидно, что использование для определения урана фотопика  $^{239}\text{Np}$  с  $E_{\gamma} = 106$  кэВ в данном случае невозможно, а  $\gamma$ -пики с энергиями 209, 229, 278 кэВ совпадают с фотопиками нуклидов, образующихся в реакциях  $(n, \gamma)$ <sup>9,10/</sup> и  $(\gamma, n)$  :  $^{182}\text{Ta}$ ,  $^{203}\text{Hg}$ ,  $^{75}\text{Se}$ ,  $^{203}\text{Pb}$ ,  $^{177m}\text{Lu}$ ,  $^{177}\text{Lu}$ .

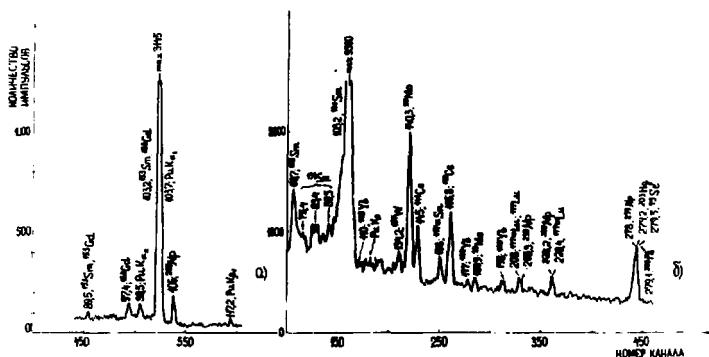


Рис. 2. Гамма-спектры образца железомарганцевой конкреции: а/ участок гамма-спектра, измеренного Ge -детектором с разрешением 500 эВ на фотопике  $E_{\gamma} = 74,7$  кэВ; б/ участок гамма-спектра, измеренного Ge(Li)-детектором объемом  $35 \text{ см}^3$  с разрешением 3,0 кэВ на фотопике  $^{137}\text{Cs}$  с  $E_{\gamma} = 0,662$  МэВ.

Из представленных результатов следует, что для измерения  $\gamma$ -спектров изотопов урана и нептуния в образцах сложного химического состава необходимо применять детекторы с разрешением 500 эВ при  $E_{\gamma} = 74,7$  кэВ. В этом случае после активации исследуемых образцов резонансными нейтронами микротрона чувствительность определения урана при анализе по изотопу



$^{239}\text{U}$  равна  $1 \cdot 10^{-7}$  г/г, по  $^{239}\text{Np}$  -  $1 \cdot 10^{-6}$  г/г. При анализе по нептунию возможна одновременная активация большого количества проб. В этом случае необходимо учитывать распределение потока резонансных нейтронов в плоскости каждого канала графитовой призмы микротрона, что достигается с помощью мониторинга.

Авторы глубоко признательны Г.Н.Флерову за постановку проблемы и руководство исследованиями, Ю.Ц.Оганесяну и Ю.Э.Пенионжквичу за обсуждение результатов и ценные замечания.

#### ЛИТЕРАТУРА

1. Turkowsky C., et al. Radiochim.Acta, 1967, 8, p.27.
2. Mahlman H.A., Leddicotte G.W. Anal.Chem., 1955, 27, p.823.
3. Smalls A.A. Analyst, 1952, 77, p.778.
4. Bate G.L., Huizenga J.R. Geochim.Cosmochim.Acta, 1963, 27, p.345.
5. Goles G.G., Anders E. Geochim.Cosmochim.Acta, 1962, 26, p.723.
6. Brunfelt A.O., Steinnes E. Anal.Chim.Acta, 1969, 48, p.13.
7. Steinnes E., Brune D. Talanta, 1969, 9, p.1326.
8. Бурмистров В.Р., Мадиянов Т.Н. Изв. АН Каз.ССР, сер. физ-мат. наук, 1977, 6, с.61.
9. Ваганов М.А. и др. Инструментальный метод нейтроно-активационного определения микроколичества урана. В кн.: Прикладная ядерная спектроскопия. Атомиздат, М., 1977, в.7, с.289.
10. Ганзориг Ж. и др. ОИЯИ, 6-7040, Дубна, 1973.
11. Выропаев В.Я. ОИЯИ, 14-9446, Дубна, 1976.