

ОБЪЕДИНЕННЫЙ
ИНСТИТУТ
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ
ДУБНА

1512 / 83

21 / 3-83
18-82-930

Во Дак Банг

МЕТОД ЭТАЛОНИРОВАНИЯ
ПРИ РАДИОАКТИВАЦИОННОМ АНАЛИЗЕ
ЭЛЕМЕНТНОГО СОСТАВА ВЕЩЕСТВА

Направлено в журнал "Атомная энергия"

1982

При проведении радиоактивационного анализа состава вещества применяют два способа эталонирования - так называемые методы внешнего и внутреннего стандарта. Последний наиболее полно удовлетворяет требованиям, предъявляемым к эталону, однако он отличается большой трудоемкостью, что ограничивает его применение в практике массового радиоактивационного анализа. В этом отношении метод внешнего стандарта удобнее, но его использование может привести к ошибкам, обусловленным неидентичностью в матрицах эталона и пробы. Эти ошибки велики в тех случаях, когда эффекты поглощения и рассеяния в пробе значительны. Такое положение возникает, когда используются /с целью повышения чувствительности анализа/ большие навески проб, например, при работе с малоинтенсивными источниками радиации, такими как $Sb - Be$ источники^{/1/} и микротроны^{/2/}. Эта проблема особенно остра в случае использования для аналитических целей мягкого γ -излучения активированных образцов^{/6/}. Задачей настоящей работы является разработка такого внешнего стандарта, который учитывал бы влияние матрицы в каждой конкретной пробе, то есть обладал бы свойствами внутреннего стандарта.

1. ТЕОРИЯ

Пусть имеется непоглощающая подложка в форме диска с радиусом r , на которую нанесен тонкий слой подлежащего определению элемента, взятого в таком количестве, чтобы взаимодействием излучения с ним можно было пренебречь. Рассмотрим отличие такого диска от внутреннего стандарта, в котором определяемый элемент однородно распределен в матрице, заполняющей объем образца. Ограничимся при этом наиболее распространенным на практике случаем, когда образец имеет форму цилиндра с радиусом R и высотой H . Очевидно, что отличия заключаются, во-первых, в геометрии, во-вторых, в спектре облученного образца и диска и, в-третьих, в процессах поглощения и рассеяния излучения определяемого радионуклида матрицей образца. Как будет показано, эти эффекты можно учесть в трех измерениях, геометрии которых приведены на рис.1. Очевидно, что разность $N_x = N_1 - N_0$ с поправкой на геометрию, поглощение и рассеяние будет соответствовать такому внутреннему стандарту, когда все нанесенное на диск вещество распределяется однородно в объеме цилиндра. Поглощение и рассеяние же учитывается при измерении в геометрии, приведенной на рис.1. Рассмотрим перечисленные выше поправки

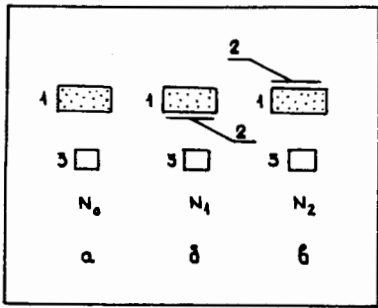


Рис.1. Геометрическая схема расположения детектора /3/, образца /1/ и дискового эталона /2/. N_0, N_1, N_2 - счет детектора соответственно в случаях а, б, в.

1.1. Поправка на геометрию

Если геометрия чувствительного объема детектора и измеряемого объекта, а также взаимное их расположение известны, то эту поправку можно с достаточной степенью точности рассчитать. К сожалению, на практике они не всегда известны, а применяемые детекторы подчас имеют сложную форму чувствительного объема /например, в случае Ge(Li)- β -детекторов/. Данное затруднение можно обойти путем введения понятия эффективного центра детектора, относительно которого его можно рассматривать как точечный. Очевидно, что эффективный центр будет лежать на оси системы. С учетом сказанного величина P_c - интенсивность излучения поглощающего цилиндрического образца в точке, расположенной на продолжении его оси и отстоящей от нижнего основания на расстоянии x_0 , равна^{/3/}:

$$P_c = 2\Gamma_\gamma \pi q R \int_0^k \int_0^n \frac{m d m d n}{(n+p)^2 + m^2} e^{-\mu R \frac{n}{n+p} \sqrt{(n+p)^2 + m^2}} = 2\Gamma_\gamma \pi q R G_2(k, p, \mu R) \quad /4/$$

Здесь $m = \rho/R$; $n = z/R$; $k = H/R$; $p = x_0/R$, где ρ, z, ϕ - цилиндрические координаты. Интенсивность излучения диска P_d на расстоянии y_0 от его плоскости в направлении оси дается формулой

$$P_d = \pi \sigma \Gamma_\gamma \ln \frac{y_0^2 + r^2}{y_0^2} \quad /2/$$

где q, σ - соответственно объемная и поверхностная плотности определяемого элемента; Γ_γ - постоянная, зависящая только от излучения рассматриваемого радионуклида. Если P измеряется в единицах мощности дозы, то Γ_γ имеет смысл гамма-постоянной нуклида. Значения x_0 и y_0 в /1/ и /2/ можно определить экспериментально, располагая излучающий диск на различных расстояниях от детектора и аппроксимируя методом наименьших квадратов, выраженным функци-

ей вида /2/, найденную зависимость счёта от расстояния. Зная x_0 и y_0 и потребовав выполнения равенства $\pi R^2 q H = \pi r^2 \sigma$, нетрудно определить искомую величину по формуле

$$N_x = \frac{2r^2 G_2(k, p, \mu R)}{2H \ln [(r^2 + y_0^2)/y_0^2]} \quad /3/$$

1.2. Поправка на поглощение и рассеяние

Заметим, что эта поправка по величине значительно меньше предыдущей и при ее расчете оправданы некоторые упрощения. Во-первых, имея в виду малые значения k , будем пренебрегать многократным рассеянием, являющимся по сути дела эффектом второго порядка по сравнению с эффектами поглощения и однократного рассеяния. Таким образом, в формуле /1/ под μ будем подразумевать линейный коэффициент ослабления γ -квантов данной энергии. Далее, потребуем, чтобы $r/R \leq 1$, и будем рассматривать геометрию "в" на рис.1 как барьерную /такое допущение также справедливо при малых k /. В таком случае интенсивность излучения диска, лежащего на верхнем основании цилиндра в точке, расположенной на продолжении его оси, равно

$$P_{ds} = 2\pi \Gamma_\gamma \sigma [Ei(-\mu H \epsilon) - Ei(-\mu H)] \quad /4/$$

где $Ei(x) = \int_{-\infty}^x \frac{e^u}{u} du$ - интегрально-показательная функция, ϵ - постоянная, зависящая от геометрии задачи. Из соотношений /2/ и /4/ /случаи "б" и "в" на рис.1/ следует

$$Ei(-\mu H \epsilon) - Ei(-\mu H) = \frac{1}{2} \left(\frac{N_2 - N_0}{N_1 - N_0} \right) \ln [(r^2 + y_0^2)/y_0^2] \equiv \alpha \quad /5/$$

Величину ϵ в /5/ лучше всего определить экспериментально, проделав опыт в геометрии "б" и "в" /рис.1/ с каким-либо веществом с известным значением μ , например с алюминием или водой. Зная ϵ , с помощью соотношения /5/ и табулированных значений функции $Ei(x)$ легко найти из опыта μ для данного образца. Затем, подставив его в формулу /3/, можно определить величину N_x . Содержание искомого элемента находится по формуле

$$x(\text{г/т}) = \frac{m N_0}{2M(N_1 - N_0)} \cdot \frac{2R H \ln [(r^2 + y_0^2)/y_0^2]}{r^2 G_2(k, p, \mu R)} \quad /6/$$

Здесь m - вес нанесенного на диск элемента, мкг; M - вес пробы, г. Отметим, что на практике часто имеют дело с определенным классом объектов, в которых надо определить содержание искомого

элемента. В таких случаях, как правило, μ изменяется в небольших пределах и, воспользовавшись разложением $Ei(x)$ при малых x :

$$Ei(x) \cong \gamma + \ln x + \sum_{n=1}^{\infty} \frac{x^n}{n \cdot n!},$$

где γ - постоянная Эйлера, и ограничившись квадратичным членом, получим

$$\frac{(\mu - \mu_0)H}{2} = \frac{1}{1 + \epsilon} \pm \sqrt{\frac{1}{(1 + \epsilon)^2} - \frac{\ln \epsilon - a}{\epsilon^2 - 1}}, \quad /7/$$

где μ_0 - среднее значение линейного коэффициента ослабления для данного класса объектов, а знак перед корнем выбирается из физических соображений. Для практически важного случая пренебрежимо малого μ , когда проводят анализ по жестким γ -линиям, расчеты значительно упрощаются. В этом случае двойной интеграл /1/ выражается в элементарных функциях:

$$P_{co} = \pi \Gamma_{\gamma} q \{ (H + x_0) [\ln(1 + R^2/(H + x_0)^2) + 2R/(H + x_0) \times \\ \times \arctg \frac{H + x_0}{R}] - x_0 [\ln(1 + R^2/x_0^2) + (2R/x_0) \arctg(x_0/R)] \}, \quad /8/$$

а формула /6/ сводится к

$$x(\Gamma/\tau) = \frac{N_0 m}{M(N_1 - N_0)} \cdot \frac{R^2 H \ln[(y_0^2 + r^2)/y_0^2]}{r^2 P_{co}(H, R, x_0)}. \quad /9/$$

2. ЭКСПЕРИМЕНТ

Изложенный выше метод эталонирования был проверен экспериментально на примере массового определения содержания золота и урана на микротроне МТ-17 с максимальной энергией электронов 16 МэВ и током 25 мкА. Содержание золота определялось по реакции $^{187}\text{Au}(n, \gamma)^{188}\text{Au}$ в потоке эпитепловых нейтронов, а урана - по реакции $^{238}\text{U}(\gamma, n)^{237}\text{U} \xrightarrow{6,75 \text{ дн.}} ^{237}\text{Np}$ на пучке тормозного излучения.

Мелкоизмельченную золотоносную породу упаковывали в полиэтиленовые контейнеры $\phi = 70$ мм, высотой 10 мм, а содержащую уран - в коробочки из плексигласа $\phi = 20$ мм с высотой 6 мм. В качестве стандартов применялись диски из фильтровальной бумаги, пропитан-

ные растворами золота и урана. Размеры дисков в первом случае $\phi = 54$ мм, во втором $\phi = 20$ мм. Каждую пробу прокладывали с торцов стандартами-дисками /для учета градиентов полей нейтронного и тормозного излучения/. Режимы облучения и измерения не отличались от изложенных в работах /4,5/. Гамма-спектры облученных образцов регистрировались Ge(Li)-детектором с активным объемом 20,3 см³. В расчетах использовались фотопики $^{198}\text{Au} / E_{\gamma} = 412 \text{ кэВ} /$ и $^{237}\text{Au} / E_{\gamma} = 208 \text{ кэВ} /$. Для данных размеров эталонов и контейнеров были определены эффективные центры детектора и рассчитан интеграл /1/ при $\mu R = 0-5$ с шагом 0,01 и точностью 0,01% /см. рис.2/. Поскольку поглощение линий 412 кэВ и 208 кэВ в порошке реальной породы было малым и почти не менялось при переходе от образца к образцу, то для проверки методики в области больших μ были приготовлены также искусственные смеси. В золотоносную руду добавлялись окислы железа (Fe_2O_3) и свинца (PbO), а образцы, содержащие уран, получались на основе комбинации H_3BO_3 и Bi_2O_3 в различном весовом отношении с последующим внесением определенного количества урана в виде раствора уранилнитрата и тщательным перемешиванием смеси.

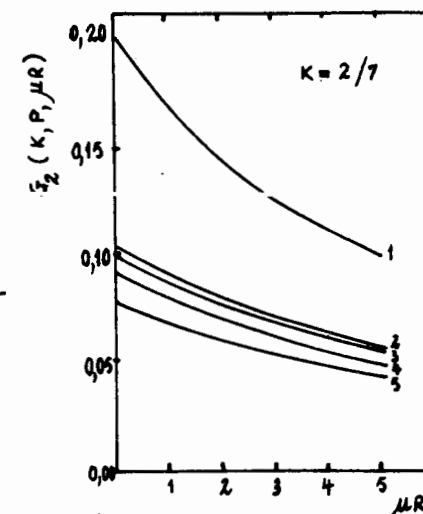


Рис.2. Функции $G_2(k, P, \mu R)$, рассчитанные для значений $k = 2/7$, $p = 29/35$, соответствующих геометрическим условиям эксперимента /кривая 2/. Кривые 1, 3, 4, 5 соответствуют значениям $P = 15/35, 30/35, 32/35, 36, 5/35$.

Результаты применения данной методики и метода внешнего стандарта для случая искусственных образцов приведены в таблице. Видно, что, в отличие от метода внешнего стандарта, данная методика приводит к результату, совпадающему с заданным значением, несмотря на значительное увеличение поглощения и рассеяния γ -квантов в образцах. Некоторый разброс данных для урана объясняется тем, что для облучения бралась только малая часть из приготовленной смеси, которую практически невозможно сделать однородной. Сравнение результатов, полученных по методу внутреннего стандарта и данной методике для образцов золотоносной руды, ил-

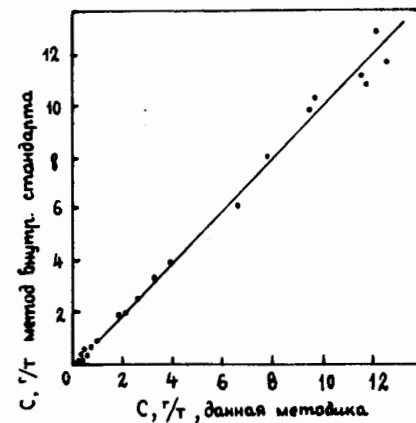
Таблица

№ п/п	$\frac{N_2 - N_0}{N_1 - N_0}$	d 10 ⁻²	MR 10 ⁻¹	G ₂₋₂ 10 ⁻²	Содержание, г/т	
					Заданное содержание	Метод внешнего стандарта
1.	0,500	16,4	0,27	10,06	14,6	14,8
2.	0,434	14,3	3,11	9,85	1,7	1,8
3.	0,424	13,9	3,59	9,75	6,5	7,2
4.	0,399	12,8	7,32	9,05	1,4	1,7
5.	0,351	11,5	8,24	8,90	1,2	1,4
6.	0,338	10,8	9,94	8,60	3,6	4,3
7.	0,701	2,17	0,67	1,58	106,0	113,7
8.	0,656	2,03	1,75	1,54	96,9	108,2
9.	0,611	1,89	3,00	1,48	76,4	89,2
10.	0,561	1,74	4,33	1,43	44,7	65,2
11.	0,473	1,46	7,17	1,32	59,3	77,6

Золото

Уран

Рис.3. Корреляция результатов определения содержания золота в геологических породах по методу стандарта и данной методике.



люстрируется рис.3. Применение регрессионного анализа показывает, что два метода очень хорошо коррелируют друг с другом. Коэффициент парной корреляции равен 0,9967, а коэффициент линейной регрессии отличается от единицы не более, чем на 2%, свободный же член в уравнении регрессии близок к нулю и равен 0,0014.

Таким образом, в этой работе предложен новый метод эталонирования⁷⁷, заметно снижающий трудоемкость приготовления эталонов при массовом радиоактивационном анализе.

ЛИТЕРАТУРА

1. Флеров Г.Н., Выропаев В.Я. Второе совещание по использованию новых ядерно-физических методов для решения научно-технических и народнохозяйственных задач. ОИЯИ, Д14-9779, Дубна, 1976, с.5.
2. Тетерев Ю.Г., Замятин Ю.С., Кучер А.М. ОИЯИ, 18-80-599, Дубна, 1980.
3. Гусев Н.Г. и др. Защита от излучения протяженных источников. Атомиздат, М., 1961, с.25.
4. Базаркина Т.В. и др. ОИЯИ, 18-12629, Дубна, 1979.
5. Эрнандес А., Кулькина Л.П. ОИЯИ, 18-80-846, Дубна, 1980.
6. Во Дак Банг и др. ОИЯИ, 18-80-407, Дубна, 1980.
7. Во Дак Банг. Авторское свидетельство СССР № 972349. Бюл.ОИПОТЗ, 1982, № 41, с.196.

Рукопись поступила в издательский отдел
31 декабря 1982 года.

НЕТ ЛИ ПРОБЕЛОВ В ВАШЕЙ БИБЛИОТЕКЕ?

Вы можете получить по почте перечисленные ниже книги, если они не были заказаны ранее.

D3-11787	Труды III Международной школы по нейтронной физике. Алушта, 1978.	3 р. 00 к.
D13-11807	Труды III Международного совещания по пропорциональным и дрейфовым камерам. Дубна, 1978.	6 р. 00 к.
D1,2-12036	Труды VI Всесоюзного совещания по ускорителям заряженных частиц. Дубна, 1978 /2 тома/	7 р. 40 к.
D1,2-12450	Труды V Международного семинара по проблемам физики высоких энергий. Дубна, 1978	5 р. 00 к.
D1,2-12450	Труды XII Международной школы молодых ученых по физике высоких энергий. Приморско, НРБ, 1978.	3 р. 00 к.
D11-80-13	Труды VII Всесоюзного совещания по ускорителям заряженных частиц, Дубна, 1980 /2 тома/	8 р. 00 к.
D11-80-13	Труды рабочего совещания по системам и методам аналитических вычислений на ЭВМ и их применению в теоретической физике, Дубна, 1979	3 р. 50 к.
D4-80-271	Труды Международной конференции по проблемам нескольких тел в ядерной физике. Дубна, 1979.	3 р. 00 к.
D4-80-385	Труды Международной школы по структуре ядра. Алушта, 1980.	5 р. 00 к.
D2-81-543	Труды VI Международного совещания по проблемам квантовой теории поля. Алушта, 1981	2 р. 50 к.
D10,11-81-622	Труды Международного совещания по проблемам математического моделирования в ядерно-физических исследованиях. Дубна, 1980	2 р. 50 к.
D1,2-81-728	Труды VI Международного семинара по проблемам физики высоких энергий. Дубна, 1981.	3 р. 60 к.
D17-81-758	Труды II Международного симпозиума по избранным проблемам статистической механики. Дубна, 1981.	5 р. 40 к.
D1,2-82-27	Труды Международного симпозиума по поляризационным явлениям в физике высоких энергий. Дубна, 1981.	3 р. 20 к.
P18-82-117	Труды IV совещания по использованию новых ядерно-физических методов для решения научно-технических и народнохозяйственных задач. Дубна, 1981.	3 р. 80 к.
D2-82-568	Труды совещания по исследованиям в области релятивистской ядерной физики. Дубна, 1982.	1 р. 75 к.
D9-82-664	Труды совещания по коллективным методам ускорения. Дубна, 1982.	3 р. 30 к.
D3,4-82-704	Труды IV Международной школы по нейтронной физике. Дубна, 1982.	5 р. 00 к.

Заказы на упомянутые книги могут быть направлены по адресу:
101000 Москва, Главпочтамт, п/я 79
Издательский отдел Объединенного института ядерных исследований

Во Дак Банг 18-82-930
Метод эталонирования при радиоактивационном анализе
элементного состава вещества

Разработана методика эталонирования при радиоактивационном анализе состава вещества, позволяющая обходиться без применения метода внутренних стандартов, тем не менее сохраняющая их положительные свойства /учет матрицы, идентичность аппаратурной линии и т.д./.

Работа выполнена в Лаборатории ядерных реакций ОИЯИ.

Препринт Объединенного института ядерных исследований. Дубна 1982

Vo Dac Bang 18-82-930
Calibration Method for the Radioactivation
Analysis of Matter Element Composition

Calibration technique for the radioactivation analysis of matter composition is developed. It permits to manage without the method of internal standards and at the same time maintains its advantages (allowance for matrix, identity of apparatus line etc.).

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

Preprint of the Joint Institute for Nuclear Research. Dubna 1982

Перевод О.С.Виноградовой.