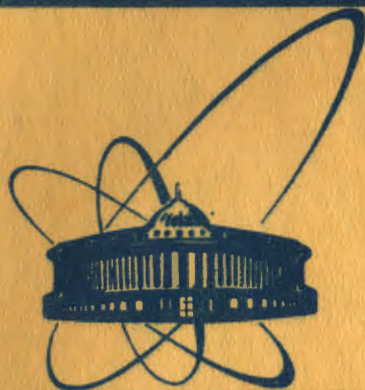


9/IV-84



**сообщения  
объединенного  
института  
ядерных  
исследований  
дубна**

1805/84

18-83-915

**Зен Чан Ук, Ю.С.Замятнин, В.Е.Жучко**

**ОПТИМИЗАЦИЯ УСЛОВИЙ ИЗМЕРЕНИЙ  
ПРИ ОПРЕДЕЛЕНИИ СОДЕРЖАНИЯ АЗОТА  
В ЗЕРНЕ  
ГАММА-АКТИВАЦИОННЫМ МЕТОДОМ**

**1983**

В Лаборатории ядерных реакций ОИЯИ осуществлен метод гамма-активационного анализа/с применением микротрона МТ-22 в качестве источника излучения/ для определения содержания азота, а следовательно, и белка, в биологических объектах, в частности, в зернах различных сельскохозяйственных культур /пшеницы, ржи, риса, тритикале и т.д./<sup>1/</sup>. Главными преимуществами метода являются высокая чувствительность, экспрессность и низкая стоимость анализов, что выгодно отличает его от других способов определения азота /белка/ в таких объектах. Однако для полного использования возможностей метода весьма важно наилучшим образом выбрать такие параметры измерений, как граничная энергия тормозного излучения микротрона и временной режим измерений, от которых в большой степени зависят точность и экспрессность анализов.

Настоящее исследование предпринято с целью получения исходных данных для осуществления такого выбора.

## ПОСТАНОВКА ЭКСПЕРИМЕНТА

Для получения необходимых данных производилось облучение стандартных образцов пшеницы и травосмеси тормозным излучением микротрона МТ-22 с перестраиваемой энергией ускоренных электронов, и последующее измерение аннигиляционного излучения образцов в течение 2-3 ч после окончания облучения. Содержание ряда элементов в стандартных образцах приведено в табл.1. Образцы пшеницы весом 3 г помещались в стандартные полиэтиленовые контейнеры, образцы травосмеси весом около 0,5 г - в контейнеры из оргстекла. Фоновая активность материала контейнера исключалась либо путем пересыпания образцов после облучения /для пшеницы/, либо облучением пустого контейнера и измерением его активности /для травосмеси/.

Установка образцов на место облучения и измерения активности производилась с помощью пневмотранспортной системы, используемой для гамма-активационного анализа<sup>1/</sup>. Ее применение позволяло начинать измерения через 1 мин после конца облучения. Продолжительность облучения составляла от 1 до 5 мин, что обеспечивало достаточно малую статистическую погрешность на протяжении всего цикла измерений.

Облучение образцов производилось в стандартной геометрии<sup>1/</sup>, причем для обеспечения равномерной активации по объему образец вращался вокруг оси, перпендикулярной направлению пучка гамма-

Таблица 1  
Содержание элементов в стандартных образцах

Элемент	Пшеница, %	Травосмесь, %
Азот	2,27	3,38
Фосфор	0,36	0,34
Хлор	0,07	0,84
Калий	0,42	2,39

квантов. Мониторирование интенсивности облучения осуществлялось путем измерения заряда, переносимого ускоренными электронами на тормозную мишень за время облучения.

Измерение активности облученных образцов осуществлялось по аннигиляционному излучению образовавшихся  $\beta^+$ -активных нуклидов с помощью детектирующей системы, состоящей из двух сцинтилляционных детекторов  $\text{NaJ(Tl)}$ , включенных на совпадения, эффективность регистрации составляла  $\sim 10\%$ . Информация о числе совпадений за каждую минуту измерений последовательно выводилась на цифропечать для последующей обработки в ЭВМ. Управление процессом измерений производилось при помощи микро-ЭВМ "МИКАМ-2"<sup>1/2/</sup>.

#### РЕЗУЛЬТАТЫ ИЗМЕРЕНИЙ И ИХ ОБРАБОТКА

Указанным выше способом были определены кривые спада  $\beta^+$ -активности образцов, полученной при их облучении тормозным излучением с различной граничной энергией в диапазоне от 15,4 до 21,3 МэВ. Четыре из 15 найденных кривых показаны на рис.1. Анализ формы кривых показал, что в общем случае их можно представить в виде суммы 4-экспонент с периодами полураспада  $\sim 2$  мин /кислород+фосфор/,  $\sim 10$  мин /азот+калий/,  $\sim 20$  мин /углерод/ и  $\sim 32$  мин /хлор/ /табл.2/. Анализ кривых и определение вклада различных составляющих в суммарную активность производилось методом наименьших квадратов по программе FUMILI<sup>3/</sup>. Полученные при этом значения начальной скорости счета отдельных нуклидов за вычетом фона относились к единице веса образца и интегральному потоку тормозного излучения за время облучения.

Как показали результаты измерений, с уменьшением граничной энергии тормозного излучения начальная активность каждой составляющей  $N_0$  уменьшается и исчезает полностью ниже порога соответствующей фотоядерной реакции. При энергии ниже порога  $(\gamma, n)$  реакции на кислороде была замечена небольшая активность с периодом 2,5 мин, обусловленная присутствием фосфора. Активность

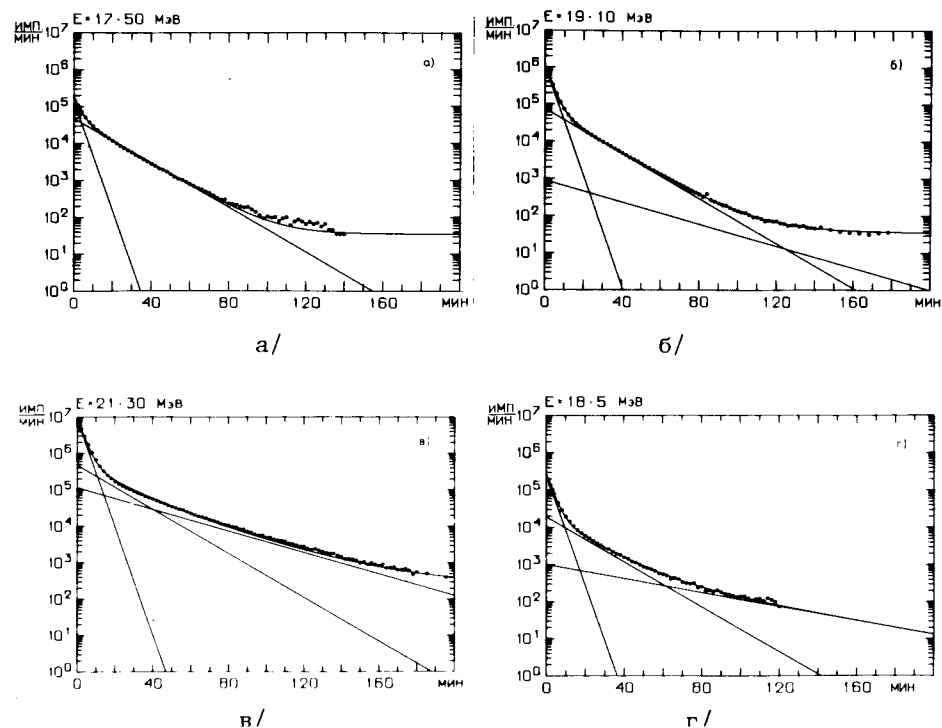


Рис.1. Кривые спада активности облученных образцов:  
а/ пшеница,  $E_{гр} = 17,5$  МэВ, б/ пшеница,  $E_{гр} = 19,1$  МэВ,  
в/ пшеница,  $E_{гр} = 21,3$  МэВ, г/ травосмесь,  $E_{гр} = 18,5$  МэВ.

Таблица 2  
Радионуклиды, образующиеся в результате  $(\gamma, n)$  реакций

Элемент	Радионуклид	Период полураспада, мин	Порог реакции, МэВ
Кислород	$^{15}\text{O}$	2,1	15,7
Фосфор	$^{30}\text{P}$	2,5	12,3
Калий	$^{38}\text{K}$	7,7	13,1
Азот	$^{13}\text{N}$	9,9	10,5
Углерод	$^{11}\text{C}$	20,3	18,7
Хлор	$^{34m}\text{Cl}$	32,0	12,6

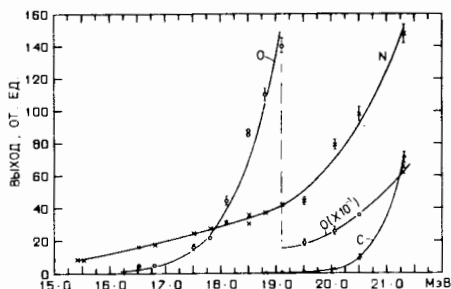


Рис.2. Выходы продуктов ( $\gamma, n$ ) реакций в зависимости от граничной энергии тормозного излучения: x - азот, o - кислород,  $\lambda$  - углерод.

хлора практически отсутствовала в образцах пшеницы и достаточно четко проявлялась в образцах травосмеси, в соответствии с более высоким содержанием в ней хлора. Зависимость относительного выхода продуктов ( $\gamma, n$ ) реакций на азоте, кислороде и углероде от граничной энергии тормозного излучения показана на рис.2. Погрешность значений выхода определялась, в основном, статистической ошибкой измерений суммарной активности образца и способом ее разложения на составляющие / ~ 1% для кислорода и азота, ~ 4% - для углерода/, а также воспроизводимостью геометрии облучения и измерения образцов / ~ 3%/.

#### ОПТИМИЗАЦИЯ МОМЕНТА НАЧАЛА ИЗМЕРЕНИЯ И ГРАНИЧНОЙ ЭНЕРГИИ ТОРМОЗНОГО ИЗЛУЧЕНИЯ

Как видно из кривых рис.1, выбор оптимального момента начала измерений активности азота определяется, с одной стороны, необходимостью распада более короткоживущих нуклидов ( $^{15}\text{O}$ ,  $^{30}\text{P}$ ), улучшающего отношение эффект/фон, с другой - уменьшением статистической точности измерений вследствие распада самого азота, а также увеличением вклада активности долгоживущих нуклидов ( $^{11}\text{C}$ ,  $^{34}\text{mCl}$ ). Аналогичная ситуация имеет место при выборе оптимальной граничной энергии тормозного излучения: активность азота и, соответственно, - статистическая точность измерений заметно повышаются с увеличением граничной энергии, однако при этом ухудшается отношение эффект/фон за счет быстрого роста активности углерода и кислорода, имеющих более высокие пороги ( $\gamma, n$ ) реакций.

С целью получения количественных выводов были рассчитаны зависимости отношения эффект/фон -  $N_N/N_\Phi$  и относительной статистической ошибки определения азота  $\Delta N_N/N_N = \sqrt{N_N + 2N_\Phi}/N_N$  от времени охлаждения образца  $t_{\text{охл.}}$  для каждой граничной энергии тормозного излучения  $E_{\text{ГР}}$ . При этом за  $N_\Phi$  принималась скорость счета, обус-

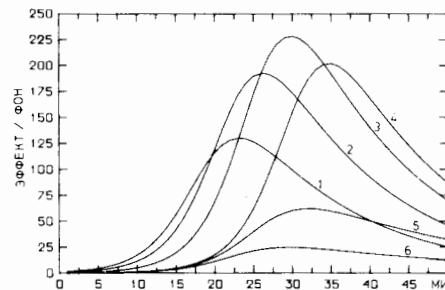


Рис.3. Зависимость отношения эффект/фон от времени измерений при различной энергии тормозного излучения: 1/  $E_{\text{ГР}} = 15,4$  МэВ, 2/  $E_{\text{ГР}} = 16,5$  МэВ, 3/  $E_{\text{ГР}} = 17,5$  МэВ, 4/  $E_{\text{ГР}} = 18,5$  МэВ, 5/  $E_{\text{ГР}} = 18,8$  МэВ, 6/  $E_{\text{ГР}} = 19,1$  МэВ.

ловленная распадом нуклидов с периодами, отличными от  $T_{1/2} \approx 10$  мин\*.

Результаты расчетов приведены на рис.3 и 4. Из рис.3 видно, что с ростом энергии, вследствие увеличения роли кислорода, оптимальное соотношение  $N_N/N_\Phi$  наступает при все более позднем времени измерений, достигая  $t_{\text{охл.}} = 35$  мин при  $E_{\text{ГР}} = 18,5$  МэВ. В районе порога реакции ( $\gamma, n$ ) на углероде /18,7 МэВ/ эта тенденция изменяется, и максимум кривых начинает перемещаться в обратном направлении, а величина отношения  $N_N/N_\Phi$  резко падает.

На рис.4 приведены аналогичные зависимости для относительной статистической ошибки измерений  $\Delta N_N/N_N$  при облучении 3 г пшеницы в течение 1 мин. Оптимальное время измерений, соответствующее минимальной относительной ошибке, имеет такой же характер изменения с ростом граничной энергии тормозного излучения. Однако вследствие увеличения статистической ошибки по мере радиоактивного распада нуклидов оптимальный момент начала измерений достигается значительно раньше и не превышает 17 мин, а сама ошибка несильно меняется с изменением энергии в пределах  $0,4 \div 0,8\%$ . Следует заметить, что несмотря на резкое падение отношения  $N_N/N_\Phi$  с ростом граничной энергии выше 18,5 МэВ, относительная ошибка измерений не только не возрастает, но даже несколько уменьшается за счет повышения активности всех нуклидов, в том числе и азота.

При выборе оптимальных условий измерений следует учитывать характер изменения как  $N_N/N_\Phi$ , так и  $\Delta N_N/N_N$ . Наиболее правильным критерием оптимизации измерений является получение наименьшей статистической ошибки при заданном ограниченном времени измерения. Однако в случае использования метода<sup>1/</sup> следует учитывать, что отдельно измерения  $N_\Phi$  не производятся, и вследствие этого накладывается дополнительное ограничение: отношение  $N_N/N_\Phi$  должно быть больше определенной величины  $> 100/p$ , где  $p$  - допустимая доля неучитываемого фона в процентах. Если считать,

\* Вклад калия /5  $\div$  10%/ по разработанной методике<sup>1/</sup> определялся независимо и вычитался из суммарной активности азота и калия.

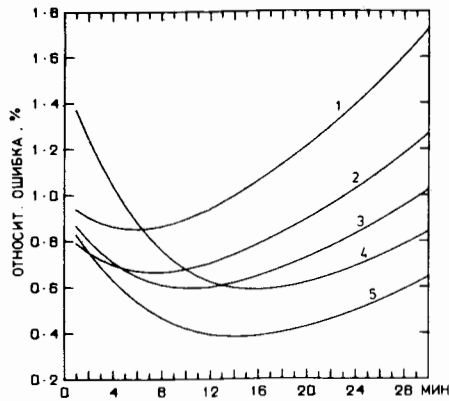


Рис.4. Относительная статистическая ошибка измерений содержания азота: 1/ -  $E_{гр} = 15,4$  МэВ, 2/ -  $E_{гр} = 16,5$  МэВ, 3/ -  $E_{гр} = 17,5$  МэВ, 4/ -  $E_{гр} = 18,8$  МэВ, 5/ -  $E_{гр} = 21,3$  МэВ.

что относительная статистическая ошибка измерений и ошибка, возникающая за счет неучитываемого фона, должны быть примерно равны, то из рис.3 и 4 можно заключить, что при  $E_{гр} = 17,5$  МэВ и начале измерений через 23 мин

после конца облучения  $\Delta N_N / N_N = P$  и достигают минимальной величины 0,8%. По-видимому, эти значения  $E_{гр}$  и  $t_{охл.}$  следует рекомендовать как наиболее оптимальные. Следует добавить, что зависимость, приведенные на рис.3 и 4, дают возможность выбирать оптимальные значения этих величин и для других условий проведения анализов, отличных от описанных в [1].

#### ПОСЛЕДОВАТЕЛЬНОЕ ИЗМЕРЕНИЕ АКТИВНОСТИ АЗОТА И УГЛЕРОДА

Высокая экспрессность разработанной методики измерений [1] переносит основные трудности проведения анализов на стадию подготовки проб, так как для определения процентного содержания белка в образце помимо количества азота необходимо знать вес образца. Одним из возможных способов преодоления этой трудности является исключение операции взвешивания путем отнесения измеренной активности азота не к весу образца, а к активности углерода, составляющего основную и достаточно стабильную часть массы зерна.

Такой способ измерений имеет еще то преимущество, что исключает ряд факторов, вносящих вклад в погрешность измерений, вследствие их одновременного влияния на активацию азота и углерода. Например, отпадает необходимость мониторинга интегрального потока электронов при облучении образцов, исключается влияние влажности зерна, искажающей истинный вес образца, и т.д. Кроме того, определение содержания углерода в образцах может представлять самостоятельный интерес для некоторых задач.

Указанные возможности могут быть осуществлены путем проведения двух последовательных измерений активности образца в моменты времени  $t_1$  и  $t_2$  после конца облучения.

Пусть  $N_{N0}, N_{N1}, N_{N2}, N_{C0}, N_{C1}, N_{C2}$  - скорости счета, обусловленные активностью азота и углерода в моменты времени  $t_0$ ,

$t_1$  и  $t_2$  соответственно /остальные изотопы для простоты рассматривать не будем/, тогда суммарная скорость счета в моменты  $t_1$  и  $t_2$  будет равна  $N_1 = N_{N1} + N_{C1} = N_{N0}e^{-\lambda_N t_1} + N_{C0}e^{-\lambda_C t_1}$  и  $N_2 = N_{N2} + N_{C2} = N_{N0}e^{-\lambda_N t_2} + N_{C0}e^{-\lambda_C t_2}$ . Решая эту систему относительно  $N_{N0}$  и  $N_{C0}$ , найдем значения начальной скорости счета азота и углерода:

$$N_{N0} = \frac{N_1 e^{-\lambda_C t_2} - N_2 e^{-\lambda_C t_1}}{e^{-(\lambda_N t_1 + \lambda_C t_2)} - e^{-(\lambda_N t_2 + \lambda_C t_1)}},$$

$$N_{C0} = \frac{N_2 e^{-\lambda_N t_1} - N_1 e^{-\lambda_N t_2}}{e^{-(\lambda_N t_1 + \lambda_C t_2)} - e^{-(\lambda_N t_2 + \lambda_C t_1)}}$$

и их относительную статистическую погрешность:

$$\frac{\Delta N_{N0}}{N_{N0}} = \frac{\sqrt{N_1 e^{-2\lambda_C t_2} + N_2 e^{-2\lambda_C t_1}}}{N_1 e^{-\lambda_C t_2} - N_2 e^{-\lambda_C t_1}},$$

$$\frac{\Delta N_{C0}}{N_{C0}} = \frac{\sqrt{N_1 e^{-2\lambda_N t_2} + N_2 e^{-2\lambda_N t_1}}}{N_2 e^{-\lambda_N t_1} - N_1 e^{-\lambda_N t_2}}$$

Эти выражения могут быть использованы для нахождения оптимальных моментов времени проведения измерений  $t_1$  и  $t_2$ .

На основе экспериментальных результатов, полученных при граничной энергии тормозного излучения 21,3 МэВ, по приведенным выше формулам были рассчитаны относительные статистические ошибки измерений для различных значений  $t_1$  и  $t_2$ . Результаты расчета, приведенные на рис.5, показывают, что в пределах значения  $9 \text{ мин} \leq t_1 \leq 25 \text{ мин}$  наилучшая статистическая точность измерений достигается при  $t_2 - t_1 = 40 \div 50 \text{ м}$  и составляет для азота  $0,5 \div 1\%$ , для углерода -  $1,2 \div 1,5\%$ . При этом момент начала первого измерения  $t_1$  выбирается в соответствии с выводами предыдущего параграфа и опреде-

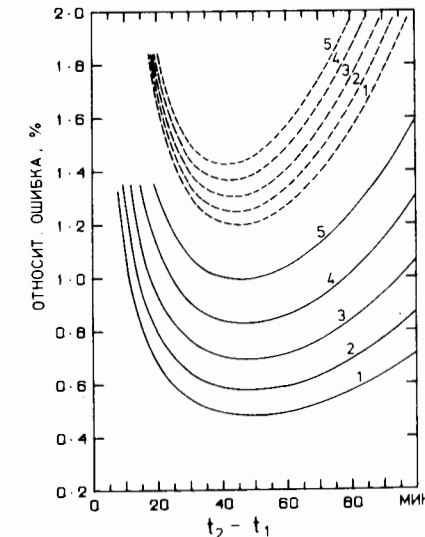


Рис.5. Относительная статистическая ошибка измерений содержания азота и углерода для различных моментов первого и второго измерений: —  $\Delta N_N / N_N$ , - - -  $\Delta N_C / N_C$ ;  $t_1 = 9$  мин, 2/ -  $t_1 = 13$  мин, 3/ -  $t_1 = 17$  мин, 4/ -  $t_1 = 21$  мин, 5/ -  $t_1 = 25$  мин.

ляется распадом  $^{15}\text{O}$  до требуемого уровня. Полученные погрешности имеют вполне приемлемые значения и могут быть несколько улучшены /особенно для углерода/ при повышении граничной энергии тормозного излучения.

## ВЫВОДЫ

1. Экспериментально определены выходы ( $\gamma, n$ ) реакций на кислороде, азоте и углероде при облучении растительных объектов тормозным излучением микротрона МТ-22 с граничной энергией от 15,4 до 21,3 МэВ.

2. Определено оптимальное время начала измерений активности азота и граничной энергии тормозного излучения для получения заданного соотношения эффект/фон и наименьшей статистической ошибки измерений.

3. Предложена методика определения содержания азота по отношению к углероду путем последовательной регистрации активности образцов в течение двух интервалов времени, исключающая трудоемкую операцию взвешивания образцов.

4. Найдены оптимальные моменты времени измерения активности азота и углерода при использовании этой методики.

Авторы выражают глубокую признательность академику Г.Н.Флерову за инициирование исследований по применению гамма-активационного метода для анализа зерна, и за постоянный интерес к работе. Авторы также благодарны А.Г.Белову за помощь при облучении образцов.

## ЛИТЕРАТУРА

1. Флеров Г.Н. и др. ОИЯИ, 18-83-699, Дубна, 1983.
2. Глейбман Э.М., Жучко В.Е. ОИЯИ, Р10-80-51, Дубна, 1980.
3. Силин И.Н. ОИЯИ, 11-3862, Дубна, 1967.

Рукопись поступила в издательский отдел  
29 декабря 1983 года.

Зен Чан Ук, Замятнин Ю.С., Жучко В.Е.

18-83-915

Оптимизация условий измерений при определении содержания азота в зерне гамма-активационным методом

Экспериментально определены выходы ( $\gamma, n$ ) реакций на кислороде, азоте и углероде при облучении образцов тормозным излучением микротрона МТ-22 с граничной энергией от 15,4 до 21,3 МэВ. На основе этих данных установлены оптимальное время измерений активности азота и граничная энергия тормозного излучения, обеспечивающие наилучшие соотношения эффект/фон и наименьшую статистическую ошибку измерений. Предложена методика определения содержания азота в образце по отношению к углероду путем последовательной регистрации активности образцов, исключающая операцию их взвешивания. Найдены оптимальные моменты времени измерения активности азота и углерода.

Работа выполнена в Лаборатории ядерных реакций ОИЯИ.

Сообщение Объединенного института ядерных исследований. Дубна 1983

Zen Chan Uk, Zamyatnin Yu.S., Zhuchko V.E.

18-83-915

Optimization of Measurement Conditions at Determining the Nitrogen Content in a Grain Using the Gamma-Activation Method

The yields of ( $\gamma, n$ ) reactions on oxygen, nitrogen and carbon are determined experimentally at the irradiation of samples with strahlung brems of МТ-22 microtron with 15.4 up to 21.3 MeV boundary energy. On the basis of these data optimum time for measurements of nitrogen activities and boundary energy of bremsstrahlung which provide best effect/background ratio and the least statistical error are determined. A technique is proposed for determining the nitrogen content with respect to carbon by mean of successive registration of sample activity, which excludes sample weighting procedure. Optimum time momenta for measuring nitrogen and carbon activity are found.

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

Communication of the Joint Institute for Nuclear Research. Dubna 1983

Перевод О.С.Виноградовой