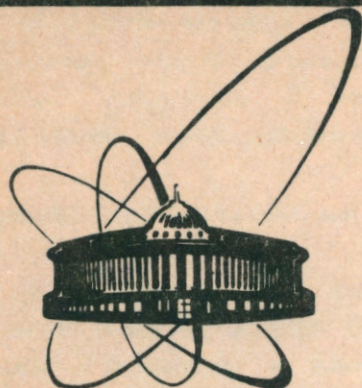


31-395



ОБЪЕДИНЕННЫЙ
ИНСТИТУТ
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ
ДУБНА

Д14-91-395

В.М.Назаров, С.С.Павлов, Э.Эррера

СОВРЕМЕННЫЕ НАПРАВЛЕНИЯ РАЗВИТИЯ
РАДИОАНАЛИТИЧЕСКИХ МЕТОДОВ
НА ИМПУЛЬСНОМ БЫСТРОМ РЕАКТОРЕ
ИБР-2 ОИЯИ

Направлено в Оргкомитет Международной конференции
"Современные направления в активационном
анализе", Вена, Австрия, 16-20 сентября 1991 г.

1991

Введение

Многолетний опыт использования нейтронного активационного анализа НАА на ядерном реакторе ИБР-2 [1] ЛФ ОИЯИ показал, что наиболее продуктивно он применяется в указанных ниже приложениях.

1. Многоэлементный НАА с использованием в основном резонансных нейтронов для изучения распределения следовых элементов (включая токсические) в объектах окружающей среды и сельскохозяйственной продукции [2, 3, 4].

2. Использование НАА для отдельного определения в объеме и на поверхности следовых и примесных элементов в чистых и особо чистых материалах, таких как Si, Ge, Al, Be, V, Cu, Nb, SiO₂, Al₂O₃, MgO, BeO, полимерах и органических растворителях [5, 6].

3. НАА геологических образцов на РЗЭ совместно с другими следовыми элементами, представляющими интерес для геохимии и геологии.

4. Проведение анализов на золото на всех стадиях его поиска и обогащения в широком интервале его концентраций от 10⁻⁴ до 10⁻¹² г/г с любым природным распределением размеров его частиц.

5. Использование мгновенных квантов захвата нейтронов для определения стехиометрического состава различных соединений (керамик, -ВТСП) и сплавов с SD не хуже 2-5 % [1].

6. Определение концентраций примесных или следовых элементов в синтетических или природных кристаллах типа корундов, шпинелей, гранатов, бериллов, топазов с целью определения влияния примесных атомов на образование радиационных (нейтронных) центров окраски.

7. Изучение медленных и быстрых процессов переноса воды, водорода, органических жидкостей в катализаторах, сорбентах, цементах и бетонах с помощью статической и динамической радиографии, а также по гамма-квантам, возникающим при захвате нейтронов водородом.

Экспериментальные установки для НАА и радиографии

Для выполнения работ указанных направлений ИБР-2 оборудован 4 позициями облучения образцов с устройствами их перемещения, временного хранения, перепаковки и измерения. Имеется также пучковый канал многоцелевого применения. В таблице 1 представлены основные физико-технические характеристики позиций облучения, расположенных около активной зоны реактора ИБР-2.

Таблица 1

Физико-технические характеристики позиций облучения ИБР-2.

Позиция облучения	Плотность потока нейтронов, (н/см ² с) 10 ¹²			Температура в позиции облучения, °С	Диаметр контейнера, мм	Максимальное число контейнеров	Система перемещения
	тепловых λ=1.8 Å	надтепловых > 0.55 эВ	быстрых > 0.5 МэВ				
P1	Cd экран	0.23±0.3	1.4 ±0.2	70	28	7	} пнев- матич. механ.
P2		0.54±0.1	0.64±0.1	60	28	7	
P3, P4		4.0 ±0.5	0.4 ±0.04	4.2 ±0.5	30-40	30	

Внутренняя высота контейнеров - 40 мм. Используются контейнеры из полиэтилена, тефлона и алюминия. В зависимости от анализируемого материала и определяемых в нем элементов используются в основном 3 режима анализа.

Таблица 2

Режим	Материал контейнера	Время		
		облучения	выдержки	измерения
1	полиэтилен	5 -10 м	2- 5 м	5 -15 м
2	тефлон	0.5- 3.0 ч	10-30 ч	0.5- 2.0 ч
3	алюминий	3 -10 д	3-10 д	0.5- 6.0 ч

При необходимости возможно использование циклического НАА с использованием изотопов секундного диапазона [1]. Пневматический транспорт осуществляет доставку облученного образца на измерение за 10-15 с. Этот режим анализа используется в основном для экспериментального определения концентраций Sc, Se, Rh, As, In, Dy, Yb и Hf в экологических и биологических образцах. Перспективно использование циклического НАА для определения Hf в цирконии.

Гамма-спектрометрия осуществляется с использованием Ge(Li) и детекторов из особо чистого Ge с разрешением 2.5-3 кэВ для линий Co^{60} . Калибровка детекторов осуществляется по аттестованным образцовым объёмным и точечным гамма-источникам. Концентрация элементов определяется абсолютными - компараторными и относительными методами. В качестве МЭС используются различные союзные и международные стандарты, а также собственного изготовления на основе хроматографических порошков SiO_2 и Al_2O_3 фирмы MERCK. Обработка результатов НАА осуществляется по программам, созданным в ОИЯИ на ПЭВМ типа IBM PC/AT.

Пучковый канал имеет 3 экспериментальные установки с пролётными базами 7.2, 15 и 27 м с устройствами формирования нейтронных пучков и детекторами. Схема канала приведена на рисунке 1. Экспериментальные установки канала используются для статической и динамической нейтронной радиографии, элементного анализа по мгновенным реакциям (n, α) , (n, p) , (n, γ) на 27 м базе и (n, f) на 15 м базе.

Статическая нейтронная радиография осуществляется на всех пролетных базах, а динамическая только на 7.2 м базе с возможным выбором энергетического интервала нейтронов от 1.0 до 10^{-3} эВ по методу времени пролета. Использование современной видеотехники с конвертором

$ZnS(Ag)+^6LiF$ позволяет получать надежное ч/б или цветное изображение объекта за одну вспышку реактора при эффективной длительности импульса тепловых нейтронов на этой базе 1.5 мс и частоте следования 5 с^{-1} . Длительность импульса быстрых нейтронов на полувысоте - 250 мкс.

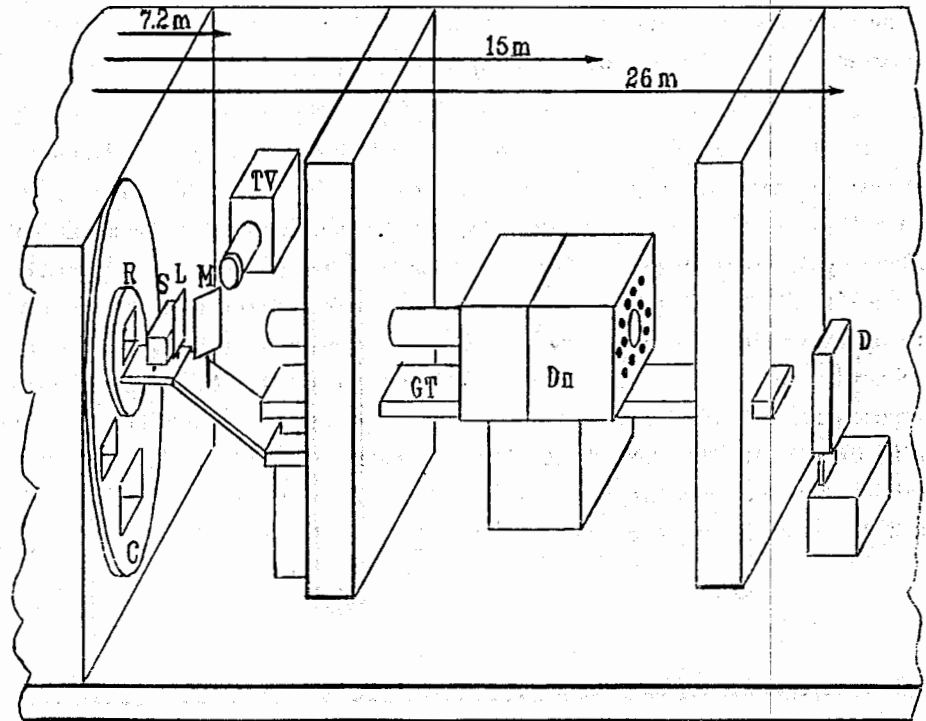


Рис.1. С - сменный коллиматор, R - вращающийся коллиматор, S - образец, L - конвертор ($ZnS + ^6LiF$), M - зеркало, TV - телекамера, GT - зеркальный нейтронвод, D_n - детектор быстрых нейтронов (ϵ 40%), D - детекторы [Si или Ge(Li)].

1 - Cr 5 - Zn 9 - Gd 13 - Cs 17 - La 21 - Nd 25 - Sb124
 2 - Tm 6 - Sr 10 - Fe 14 - Eu 18 - Sc 22 - U 26 - Sc
 3 - Rb 7 - Ca 11 - Sb122 15 - Th 19 - Tb 23 - Se 27 - Br
 4 - Mo 8 - Ba 12 - Ta 16 - Hf 20 - Ag 24 - Yb 28 - Ce

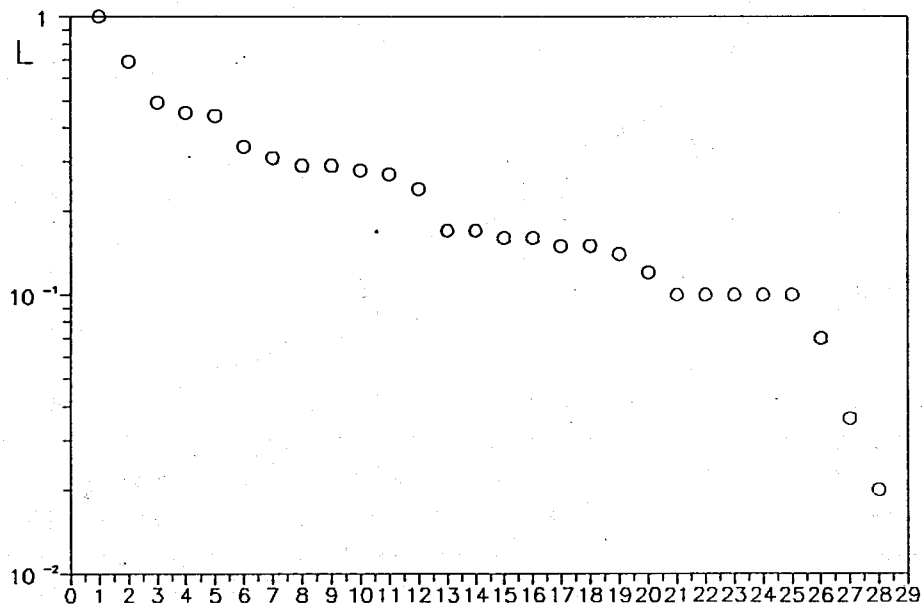


Рис.3

2. Пример использования резонансных нейтронов в инструментальном НАА особо чистого алюминия, получаемого методом зонной плавки, представлен на рис.4. Указанный на этом рисунке диапазон полученных концентраций элементов определяется не ошибкой, а изменением концентраций элементов по длине чистой зоны слитка. Результаты получены для образцов весом 6 г при времени облучения и выдержки 7 суток. Бор определяется по реакции $^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}$ по гамма-квантам 478 кэВ на пучковом канале. Результаты ИНАА хроматографически чистых порошков SiO_2 и Al_2O_3 представлены на рисунке 5. При анализе особо чистых материалов их поверхностная загрязненность снимается после облучения обычными кислотами или растворителями. Обычно пределы обнаружения указываются только для тех элементов, которые были обнаружены на поверхности.

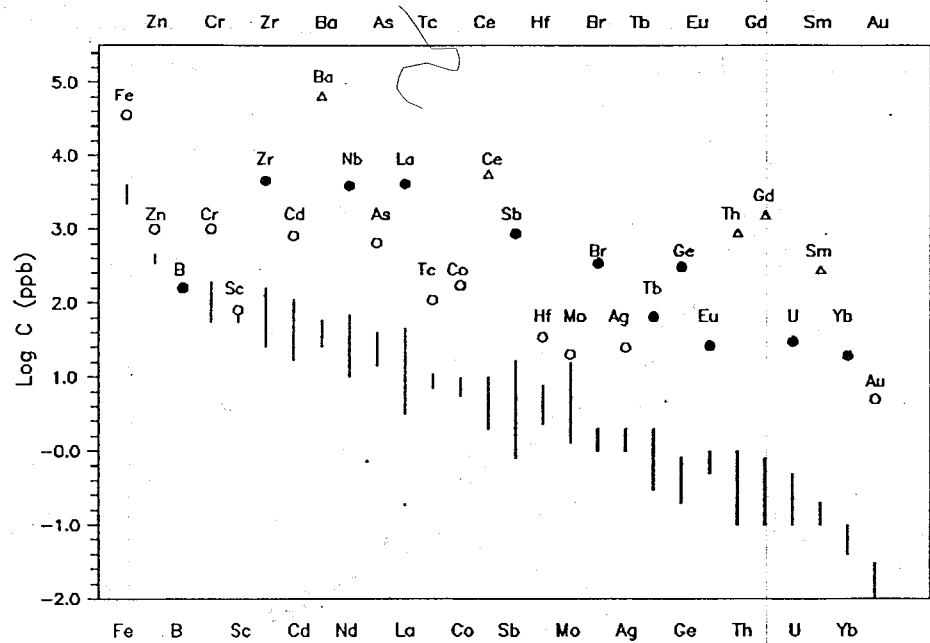


Рис.4. | - концентрация в чистой зоне длиной 60 см, о - концентрация в грязной зоне длиной 10 см (степень очистки $0.1 \div 0.3$), ● - то же, но степень очистки $0.01 \div 0.1$, Δ - то же, но степень очистки $0.001 \div 0.01$.

Для указанных выше трех режимов ИНАА с использованием резонансных нейтронов в таблице 3 представлены пределы обнаружения элементов в образцах особо чистого кремния весом 4 г.

Таблица 3

Группа элементов	C, ppb SD = 50 %
Au	0.0003
Sm Sb Ir	0.002
Tb Lu Ta Th U	0.006
Eu Tm Yb Sc Mn As Br Ag	0.03
La Se Mo Cd Hf W	0.10
Ce Na Ni Rb In Pt Hg	0.30
Nd Gd Co Ga Ru Te Ba	1.00
Cr Zn Sn	2.00
Sr Zr	15.00
Fe	70.00

Исключая Iг, практически все указанные элементы обычно наблюдаются на поверхности с SD не хуже 30%.

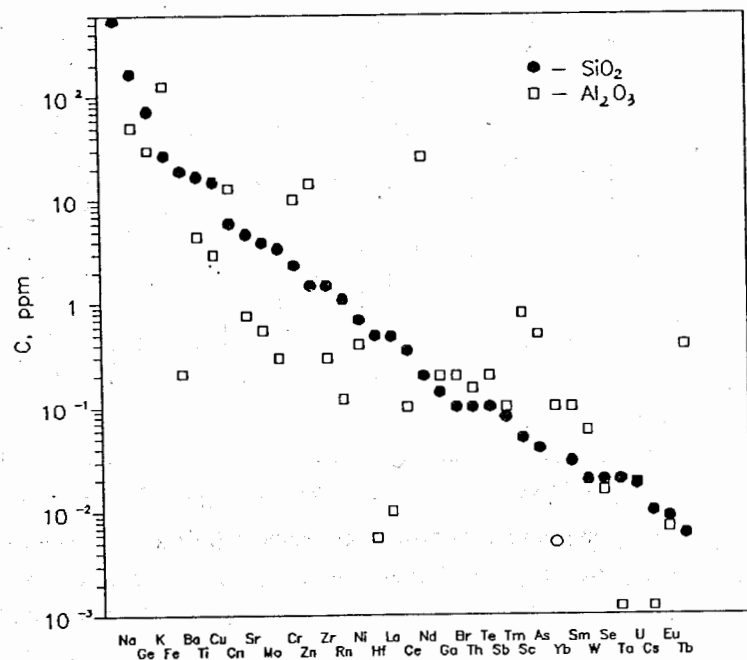


Рис.5

3. В качестве примера использования ИНАА в геологии на рис.6 представлены вариационные диаграммы распределения концентраций РЗЭ, нормированных на содержание их в хондритах. Эти диаграммы получены при изучении распределения ряда элементов, включая указанные РЗЭ, по глубине нефтяных скважин в одном из районов Кубы. обращает на себя внимание значительное увеличение содержания РЗЭ за 300 м до нефтяного пласта, расположенного на глубине 2400 м, диаграмма 3. К тому же, по флангам от этого максимального распределения (диаграммы 2 и 4) концентрации РЗЭ уменьшаются в несколько раз на расстояниях всего в 150-160 м. В этих же работах одновременно с РЗЭ были получены данные о распределении по

глубине скважин Si, Ca, Fe, Mn, Al, K, Na, Sr, V, Cl, Zn, Ba, Mo, As, Rb, по мере уменьшения концентраций от 10^5 до 10^{-1} ppm для скважины глубиной 2421 м.

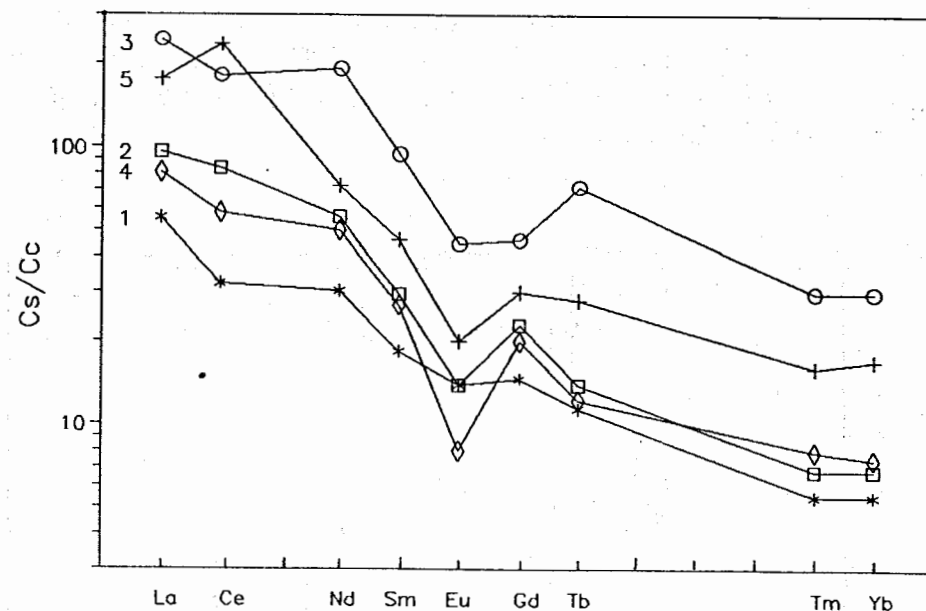


Рис.6. Cs и Cc - концентрации элементов в образце и хондритах, соответственно.

1 - средние значения Cs/Cc на глубинах 1648 и 1808 м, 4 - то же на глубинах 2311 и 2421 м, 2 - Cs/Cc на глубине 1993 м, 3 - то же на глубине 2160 м, 5 - Cs/Cc для стандарта SL-1..

4. Уже несколько лет совместно с ГИН АН СССР с помощью ИНАА и других ядерно-физических методов изучается влияние удобрений и их производств на загрязнение окружающей среды РЗЭ [4]. Результаты этих исследований будут доложены на данной конференции в докладе М.В.Фронтасевой с соавторами " Влияние производства фосфорных удобрений на объекты окружающей среды".

5. В течение последних двух лет с помощью ИНАА совместно с ИТЭФ (Москва) и GSI (Дармштад) проводятся измерения сечений испарения атомов Au при взаимодействии с тяжелыми ионами [7]. В методике измерений сечений испаряемые при бомбардировке тяжелыми ионами атомы Au с фольги толщиной 0,4 мкм собираются на коллектор из углеродной фольги толщиной около 1 мкм. Число атомов Au, осевших на коллектор, определяется ИНАА с помощью резонансных нейтронов. На рис. 7 приведена полученная относительная зависимость сечения испарения атомов Au в атомах/ион от энергии ионов в МэВ/У. Для ионов U с энергией 5,5 МэВ/У абсолютное значение сечения составило (12 ± 2) атомов/ион.

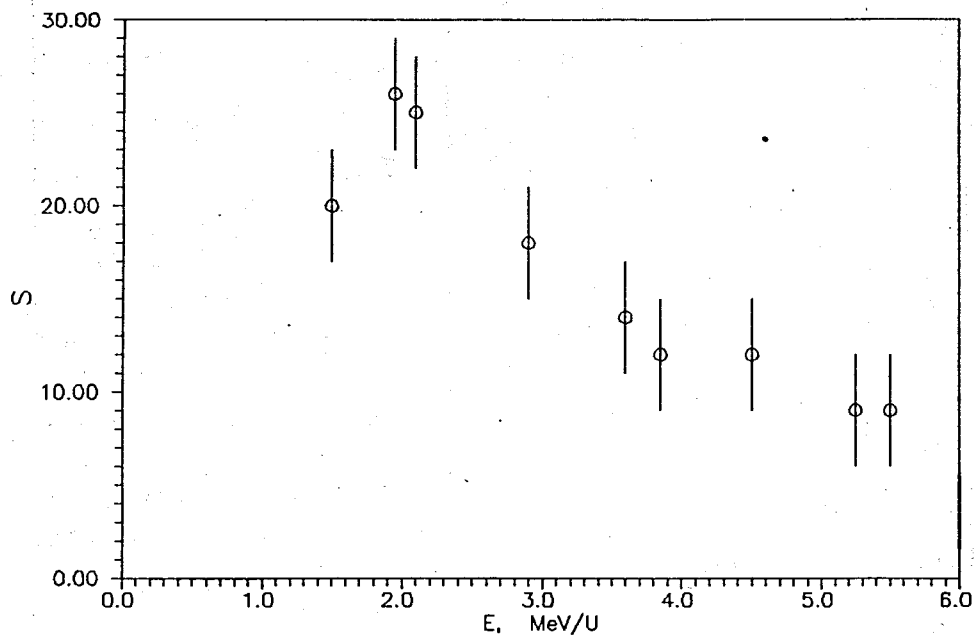


Рис. 7. S – сечение в атом/ион, относительно единицы.

6. В ЛНФ проводятся работы и по применению изотопных источников

нейтронов для экспрессного определения содержания азота в природных и синтетических материалах по регистрации мгновенных квантов, возникающих при захвате тепловых нейтронов атомами азота. На указанном принципе к настоящему времени создан и испытан в производственных условиях прибор "Азот" для определения содержания белка в зерновых культурах и комбикормах. В приборах используется Cf – источник нейтронов с выходом $5 \cdot 10^7$ н/с. Регистрация гамма-квантов с энергиями 2,223 МэВ от водорода и 10,828 МэВ осуществляется детектором NaJ(Te) с размерами 150 x 100 мм. Измеряемый материал объемом 8-10 л в приборе является и замедлителем нейтронов. В этом варианте для компенсации влияния изменения плотности и состава материала число регистрируемых квантов от ядер азота нормируется на плотность потока тепловых нейтронов в образце и на число регистрируемых квантов от водорода. Стандартное отклонение SD при определении белка в диапазоне от 8 до 70 % за время одного измерения 5 мин не превышает требований метода Кьельдаля.

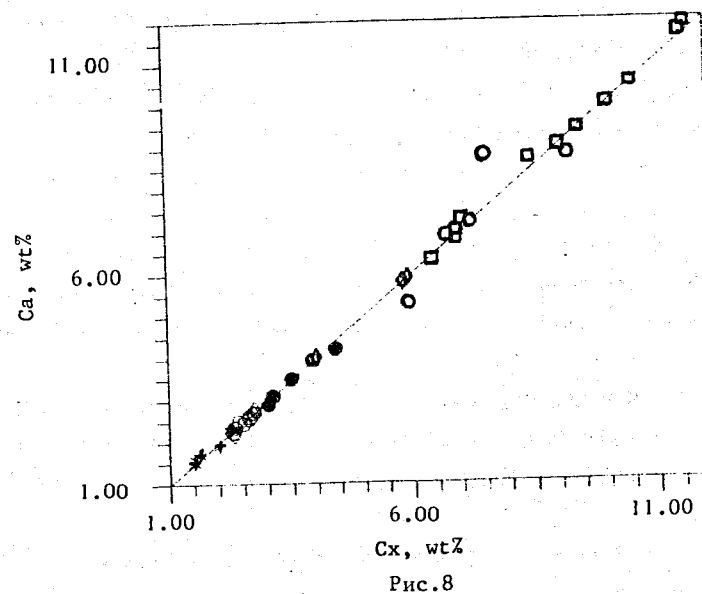


Рис. 8

На рис. 8 представлена зависимость C_a/C_x , где C_a – концентрация азота в образцах измерения прибором "Азот", а C_x – то же, но измеренная по

методу Кьельдаля. Эта зависимость получена по одной калибровке для продуктов от риса до БВК и рыбной муки. Нахождение некоторых точек за пределами ошибок объясняется плохой сыпучестью данных продуктов. Поэтому в приборе имеются устройства для контроля заполнения измерительной камеры, а также измеряется плотность продукта по поглощению в нем быстрых нейтронов.

Приведенные примеры применения радиоаналитических методов, основанных на использовании нейтронов, показывают, что их дальнейшее совершенствование и развитие будет способствовать их успешному применению в ряде фундаментальных и прикладных исследований.

Литература

1. В.М.Назаров, С.С.Павлов, В.Ф.Переседов, М.В.Фронтасьева. Развитие активационного анализа на ИБР-2. Труды International Workshop Modern Trends in Activation Analysis in JINR, Dubna, 26-28 June, 1988.
2. В.М.Назаров и др. Краткие сообщения ОИЯИ, № 6-85, Дубна, 1985, с. 37.
3. A.V.Gorbunov, S.F.Gundorina, T.L.Onischenko, M.V.Frontasyeva. Development of a Combined Method to Carry Out a Multi Element Analysis for Environment Preservation. Journ. of Radioanal. and Nucl. Chem., vol.129, No 2 (1989) 443 - 451.
4. A.A.Volokn, A.V.Gorbunov, S.F.Gundorina, B.A.Revich, M.V.Frontasyeva, Chen Sen Pal. Phosphorus Fertilizer Production as a Source of Rare-Earth Elements Pollution of the Environment. The Science of the Total Environment, 95 (1990) 141 -148.
5. Ю.И.Беляков, В.И.Меньшиков, В.М.Назаров, В.В.Сердюк, Л.П.Стрелкова, С.Б.Томилов, В.П.Чинаева, И.Эрдейвари. Использование резонансных нейтронов для анализа алюминия особой чистоты. ОИЯИ, 18-88-204, Дубна, 1988.
6. H.Rausch, I.L.Sziklai, V.M.Nazarov, P.Bodon, I.Erdelyvari, B.Toth. Determination of Impurities in High-Purity Solvents by Neutron Activation Analysis. Journ. of Radioanal. and Nucl. Chem., vol.148, No 2 (1991) 217 - 225.
7. R.Bock et al. Sputtering of Gold by Uranium Ions with UNILAC Energies. GSI, Scientific Report, 1989.

Рукопись поступила в издательский отдел
29 августа 1991 года.

Назаров В.М., Павлов С.С., Эррера Э. Д14-91-395
Современные направления развития
радиоаналитических методов на импульсном
быстром реакторе ИБР-2 ОИЯИ

Обсуждается опыт использования радиоаналитических методов, включая НАА, на импульсном быстром реакторе ИБР-2 ЛНФ ОИЯИ. Приводятся физико-технические характеристики экспериментальных установок, используемых для НАА и радиографии. Даются конкретные примеры применения резонансных нейтронов в контроле окружающей среды, в геологии нефти, в многоэлементном анализе продуктов питания и особо чистых материалов, в ядерной физике. Сообщается о работах по применению изотопных источников нейтронов для экспрессного определения содержания азота в природных и синтетических материалах.

Работа выполнена в Лаборатории нейтронной физики ОИЯИ:

Препринт Объединенного института ядерных исследований. Дубна 1991

Перевод авторов

Nazarov V.M., Pavlov S.S., Herrera E.F. D14-91-395
Recent Developments of Radioanalytical Methods
at IBR-2 Pulsed Fast Reactor

The experience of the use of radioanalytical methods, including NAA at IBR-2 pulsed fast reactor of the JINR, is discussed. Physical and technical parameters of the experimental installation designed for NAA and radiography are given. The detailed examples of the application of resonance neutrons to the control of the environment in the geology of oil, in multi-element analysis of food products and superpure materials as well as in nuclear physics are reviewed. The works on the application of the neutron isotopes sources for express determination of nitrogen content in original and synthetic materials are introduced.

The investigation has been performed at the Laboratory of Neutron Physics, JINR.

Preprint of the Joint Institute for Nuclear Research. Dubna 1991