

С 446(07)
Ф-918



Учебно-
методические
пособия
Учебно-научного
центра ОИЯИ
Дубна

УНЦ-2009-38

М. В. Фронтасьева

НЕЙТРОННЫЙ АКТИВАЦИОННЫЙ АНАЛИЗ
НА РЕАКТОРЕ ИБР-2 ЛНФ ОИЯИ

Методическое пособие

2009

Учебно-научный центр ОИЯИ

С 446(07)
Ф-918

М. В. Фронтасьева

**НЕЙТРОННЫЙ АКТИВАЦИОННЫЙ АНАЛИЗ
НА РЕАКТОРЕ ИБР-2 ЛНФ ОИЯИ**

Методическое пособие

Объединенный институт
ядерных исследований
БИБЛИОТЕКА

105446р.

Содержание

Фронтасьева М. В.
Ф40 Нейтронный активационный анализ на реакторе ИБР-2 ЛНФ ОИЯИ: Методическое пособие. — Дубна: ОИЯИ, 2009. — 40 с.

Нейтронный активационный анализ (НАА) занимает одно из главных мест среди аналитических методов. Этому способствует его высокая чувствительность, селективность, возможность одновременного определения многих элементов в одном образце, а также отсутствие необходимости растворения пробы (недеструктивный характер). Метод широко используется для проведения исследований в геологии, биологии, медицине, экологии и материаловедении. В Лаборатории нейтронной физики им. И. М. Франка ОИЯИ на импульсном быстром реакторе ИБР-2 функционирует радиоаналитический комплекс РЕГАТА, где проводятся работы по НАА, имеющие как научное, так и прикладное значение. В данном методическом пособии описаны основные характеристики метода НАА и соответствующей аппаратуры, используемой в ЛНФ ОИЯИ, а также содержатся лабораторные работы, предназначенные для студентов, проходящих практику на установке РЕГАТА.

Frontasyeva M. V.

Neutron Activation Analysis at the IBR-2 Reactor of FLNP, JINR: Methodical Textbook. — Dubna: JINR, 2009. — 40 p.

Neutron activation analysis (NAA) is one of the most powerful analytical techniques. This is due to its high sensitivity, selectivity and possibility of simultaneous multi-element determination, as well as non-destructive character (without dissolution of samples). NAA is widely used in geology, biology, medicine, environmental and material sciences. In the Frank Laboratory of Neutron Physics, JINR, at the IBR-2 pulsed fast reactor the radioanalytical complex REGATA for NAA is functioning for scientific and applied researches. The given textbook contains the main characteristics of NAA and relevant instrumentation used in FLNP, JINR, as well as laboratory works designed for the NAA practicum at the installation REGATA.

© Объединенный институт
ядерных исследований, 2009

1. Физические основы нейтронного активационного анализа (НАА)	4
1.1. Основные виды взаимодействия нейтронов с атомными ядрами	4
1.2. Сечение взаимодействия	7
1.3. Методы нейтронного активационного анализа	8
1.4. Уравнение активации	11
1.5. Вывод уравнения активации с учетом энергетического распределения нейтронов	13
1.6. Вычисление площади пика	16
1.7. Определение изотопного состава	17
1.8. Интерферирующие реакции	19
2. Проведение НАА с использованием ПТУ РЕГАТА на реакторе ИБР-2 ЛНФ ОИЯИ	21
2.1. Общий ход НАА	21
2.2. Подготовка образцов к облучению	22
2.3. Процесс облучения на реакторе ИБР-2	23
2.4. Обработка γ -спектра	31
Лабораторная работа № 1	
Калибровка Ge(Li)-детекторов. Определение относительной эффективности регистрации γ -квантов Ge(Li)-детекторами	36
Лабораторная работа № 2	
Определение градиента плотности потока нейтронов в каналах облучения ПТУ РЕГАТА	37
Лабораторная работа № 3	
Проведение нейтронного активационного анализа образцов мхов-биомониторов и идентификация короткоживущих изотопов элементов, содержащихся в образце	38
Литература	39

1. Физические основы нейтронного активационного анализа

Активационный анализ (АА) – метод определения элементного состава, основанный на измерении радиоактивного излучения, возникающего при превращении ядер под действием ядерных частиц или гамма-квантов с достаточной энергией.

В активационном анализе в аналитических целях используется возбуждение (активация) стабильных ядер определяемых элементов при облучении анализируемых материалов потоками ядерных частиц или γ -квантов. По типу ядерных частиц, используемых для воздействия на ядра элементов, АА разделяется на нейтронный активационный анализ, фотоактивационный анализ и активационный анализ с помощью заряженных частиц.

Нейтронный активационный анализ (НАА) – активация элементов при облучении нейтронами – является одним из ведущих методов активационного анализа.

НАА позволяет определять следующий круг элементов: Ag, Al, As, Au, B, Br, Ca, Cd, Ce, Cl, Cr, Cs, Cu, Dy, Eu, Fe, Ga, Hf, Hg, I, Ir, K, Li, Mg, Mn, Zn, Mo, Na, Ni, Np, Os, Pt, P, Pu, Rb, Sb, Se, Sn, Ta, Te, Th, W, V, U. При этом погрешность анализа в большинстве практических случаев составляет от 1 до 10 процентов, а предел обнаружения от сотен нанограмм до единиц пикограмм [1].

Нейтронный активационный анализ подразделяется:

1) *Радиохимический нейтронный активационный анализ (РНАА)*, связанный с применением химических процедур для выделения активированных элементов в чистом виде.

2) *Инструментальный нейтронный активационный анализ (ИНАА)*, в котором идентификацию и количественное определение содержания элементов в облученном образце проводят избирательно, применяя вариацию условий облучения (энергию бомбардирующих частиц, время облучения) и учитывая ядерно-физические свойства элементов и образующихся радионуклидов (особенности схем распада определяемых радионуклидов, период полураспада).

1.1 Основные виды взаимодействия нейтронов с атомными ядрами

Нейтроны по энергии делятся на несколько условных групп (табл. 1.1).

Таблица 1.1. Энергетические группы нейтронов

Нейтроны	Энергия E_n , эВ
Тепловые	$< 0,55$
Эпитепловые (резонансные)	$0,55 \div 10^5$
Быстрые	$10^5 \div 25 \cdot 10^6$

При прохождении через вещество нейтроны взаимодействуют только с ядрами атомов. Характер этого взаимодействия определяется кинетической энергией нейтронов и структурой ядра.

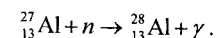
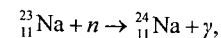
Существует два основных вида взаимодействия нейтронов с ядрами.

- 1) Упругое рассеяние, при котором суммарная кинетическая энергия нейтрона и ядра не меняется и ядро остается в основном состоянии.
- 2) Захват нейтрона ядром с образованием составного ядра, находящегося в возбужденном состоянии. Причем энергия возбуждения $E' = E_n + \varepsilon_{св}$, где E_n – энергия поглощенного нейтрона, $\varepsilon_{св}$ – энергия связи нейтрона в составном ядре.

В зависимости от энергии возбуждения и свойств составного ядра переход в более низкое энергетическое состояние может совершаться путем испускания γ -квантов и ядерных частиц (нейтронов, протонов, α -частиц и т.д.). Иногда поглощение нейтрона может привести к делению ядра.

В соответствии с характером распада составного ядра выделяют следующие процессы.

а) Радиационный захват (n, γ) – основной процесс взаимодействия нейтронов с ядрами элементов. В результате реакции (n, γ) образуется изотоп облучаемого элемента в возбужденном состоянии. Например,



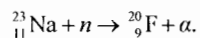
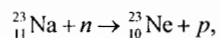
При переходе в основное состояние каждый изотоп испускает характерное γ -излучение обычно со сложным спектром [2], по которому его можно идентифицировать и определить количественно.

Несмотря на то, что в большинстве случаев радиационный захват приводит к возникновению радиоактивного изотопа, существует также вероятность образования стабильных изотопов. Например, магний имеет три стабильных изотопа: ^{24}Mg , ^{25}Mg и ^{26}Mg . В реакциях типа $^{24}\text{Mg}(n,\gamma)^{25}\text{Mg}$, $^{25}\text{Mg}(n,\gamma)^{26}\text{Mg}$ и $^{26}\text{Mg}(n,\gamma)^{27}\text{Mg}$ только изотоп ^{27}Mg радиоактивен, два других – стабильны.

Для тепловых и эпитепловых нейтронов реакция (n,γ) является, как правило, преобладающей среди процессов взаимодействия нейтронов с ядром и вносит наибольший вклад в сечение захвата.

б) Расщепление ядер с вылетом заряженных частиц (n,p) , (n,α)

Для того чтобы заряженная частица могла покинуть составное ядро, она должна иметь энергию, достаточную для преодоления потенциального барьера ядра. Поэтому реакции (n,p) и (n,α) возможны под действием быстрых нейтронов. Например,



Наиболее вероятны эти реакции для легких и средних ядер [3,4]. В большинстве случаев они приводят к образованию стабильных ядер или радиоактивных изотопов с большим периодом полураспада. Вследствие этого указанные реакции редко используют для активационного определения элементов.

в) Эмиссия нейтронов $(n,2n)$

Реакция такого типа всегда является эндонергетической, так как для освобождения дополнительного нейтрона нужно затратить энергию, превышающую энергию связи нейтрона в ядре. В реакции $(n,2n)$ образуется нейтронодефицитный изотоп исходного ядра, который, часто оказываясь радиоактивным, распадается путем позитронного распада.

г) Деление ядер (n,f)

При облучении тепловыми и медленными нейтронами реакция (n,f) наблюдается только на ядрах ^{235}U и ^{233}U . Под действием быстрых нейтронов – на ядрах ^{238}U и ^{232}Th . Осколки, образующиеся при делении этих ядер, являются радиоактивными изотопами. Они содержат избыток нейтронов и находятся в середине периодической системы от Zn до Gd.

д) Неупругое рассеяние (n,n')

При неупругом рассеянии (n,n') нейтрон отдает часть своей энергии для возбуждения бомбардируемого ядра. Энергия первого возбужденного состояния (уровня) зависит от атомного номера ядра. При переходе из возбужденного состояния в основное испускается γ -квант с энергией, характерной для каждого ядра. Из-за небольшой вероятности и почти полного отсутствия радиоактивных продуктов неупругое рассеяние мало используют для активационного анализа.

1.2 Сечение взаимодействия

Взаимодействие нейтронов с ядрами вещества определяется вероятностью протекания процессов, перечисленных выше, или величиной, называемой *сечением взаимодействия* (σ).

$$\sigma = \frac{N(E_n)}{N_0 \Phi}, \quad (1.2.1)$$

где $N(E_n)$ – число ядер, провзаимодействовавших с нейтронами, зависящее от энергии нейтронов;

N_0 – число всех ядер;

E_n – энергия нейтронов, эВ;

Φ – поток нейтронов, $n \cdot \text{м}^{-2}$.

Сталкиваясь с ядром, нейтрон может рассеяться или быть захваченным. Тогда согласно вероятности того или иного процесса полное сечение взаимодействия может быть представлено как сумма:

$$\sigma_{\text{tot}} = \sigma_{\text{abs}} + \sigma_{\text{sc}}, \quad (1.2.2)$$

где σ_{tot} – полное сечение;

σ_{abs} – сечение поглощения (захвата);

$\sigma_{\text{сс}}$ – сечение рассеяния.

Поскольку в результате захвата нейтрона возможно протекание целого ряда процессов, то суммарное сечение захвата будет складываться из парциальных сечений отдельных процессов – вероятностей осуществления определенного типа ядерной реакции:

$$\sigma_{\text{abs}} = \sigma(n, \gamma) + \sigma(n, p) + \sigma(n, \alpha) + \sigma(n, 2n) + \sigma(n, n'). \quad (1.2.3)$$

Очень часто основной вклад в суммарное сечение захвата при данной энергии нейтронов дает только один из перечисленных видов ядерных превращений. При изменении энергии нейтронов меняется соотношение вкладов парциальных сечений в суммарное сечение. Наибольшее значение суммарного сечения наблюдается для тепловых нейтронов. В области резонансных нейтронов сечения иногда достигают очень высоких значений.

Для характеристики вероятности реакций, приводящих к образованию радиоактивных изотопов, часто выделяют *сечение активации* [2, 5, 6]. Если при облучении моноизотопного элемента протекает единственная реакция, приводящая к образованию радиоактивного изотопа, то *сечение захвата* должно совпадать с *сечением активации*.

Значение величины полного сечения взаимодействия обычно порядка 10^{-28} м^2 , которое сравнимо с размерами атомных ядер. Поэтому $10^{-28} \text{ м}^2 = 1 \text{ б}$ (барн) является единицей измерения сечения взаимодействия.

1.3 Методы нейтронного активационного анализа

В соответствии с энергией нейтронов, используемых для активации, различают три метода нейтронного активационного анализа: активационный анализ на тепловых, резонансных (эпитепловой нейтронный активационный анализ) и быстрых нейтронах [7]. Такая классификация прежде всего обусловлена большими различиями в характере взаимодействия основных энергетических групп нейтронов с веществом.

Активационный анализ на тепловых нейтронах. Первые работы по активационному анализу были выполнены с использованием тепловых нейтронов. Этот вариант НАА занимает ведущее место среди активационных методов и имеет следующие достоинства.

Во-первых, при облучении большинства элементов протекает только одна ядерная реакция (n, γ), в результате которой образуется радионуклид исходного элемента. Это уменьшает число радионуклидов, которые могут быть получены при многоэлементном анализе, а в отсутствие реакций, связанных с изменением заряда ядер, исключает эффекты интерференции γ -линий различных элементов.

Во-вторых, большинство нуклидов являются β -излучателями, испускающими и гамма-кванты.

В-третьих, по реакции (n, γ) у подавляющего числа элементов периодической системы происходит образование радионуклидов, что придает методу определенную универсальность.

Наконец, аналитическое определение возможно не только по излучению радионуклидов, но и по мгновенному γ -излучению радиационного захвата, а это определенным образом расширяет возможности метода. Благодаря большим сечениям реакции (n, γ) достигается высокая чувствительность метода.

Эпитепловой нейтронный активационный анализ. НАА на резонансных нейтронах имеет много общего с активационным анализом на тепловых нейтронах, так как и в том, и в другом случае ведущую роль играет реакция радиационного захвата.

Однако этому методу свойственны определенные особенности, связанные главным образом со спецификой взаимодействия резонансных нейтронов с ядрами элементов и способами облучения образцов.

Сечение реакций в эпитепловой области равномерно убывает с ростом энергии нейтронов согласно закону $1/v$ (v – скорость нейтронов). Но у многих изотопов функция возбуждения при определенной энергии нейтронов имеет резонансные пики. Это наблюдается в случае, когда энергия возбуждения совпадает с одним из энергетических уровней составного ядра. В области резонанса сечение радиационного захвата достигает высоких значений и может превосходить сечение активации на тепловых нейтронах более чем на два порядка.

Такой характер функции возбуждения позволяет повышать избирательность анализа элементов. Но эта возможность не всегда может быть реализована из-за отсутствия источника моноэнергетических нейтронов с требуемой энергией.

Для аналитических целей используются только резонансные нейтроны, получающиеся главным образом в процессе замедления быстрых нейтронов. В ядерных

реакторах потоки резонансных нейтронов всегда сопровождаются интенсивным потоком тепловых нейтронов. Поток резонансных нейтронов имеет сплошное распределение, но плотность потока изменяется по закону $1/E$, где E – энергия нейтронов.

Уже сама зависимость плотности потока резонансных нейтронов от энергии способствует большей активации элементов, резонансы которых расположены в области низких энергий, так как здесь плотность потока резонансных нейтронов выше плотности потока тепловых (рис. 1.1). Воздействовать на избирательность активации резонансными нейтронами можно путем применения фильтров, которые видоизменяют энергетический спектр нейтронов в желаемую сторону. Наиболее удачный фильтр – кадмиевый, тонкий слой которого (1 мм) поглощает все нейтроны с энергией менее 0,55 эВ. НАА на резонансных нейтронах представлен тремя вариантами: облучение с нерезонансным фильтром, облучение с резонансным фильтром и анализ по времени замедления нейтронов.

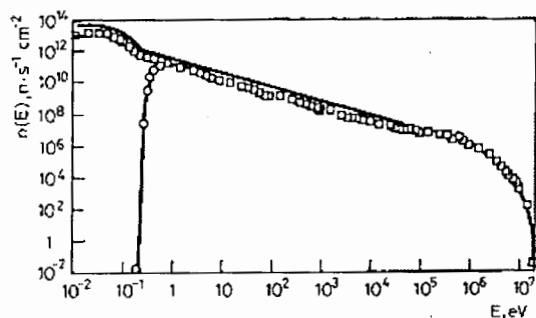


Рис 1.1. Энергетический спектр нейтронов в каналах облучения ИБР-2: Ch1 (□) и Ch3 (кривая); (○) – с кадмиевым экраном [8]

НАА на быстрых нейтронах. Для быстрых нейтронов сечение реакции (n, γ) невелико, и основную роль начинают играть пороговые реакции типа (n, α) , (n, p) и $(n, 2n)$. Величина порога таких реакций обычно составляет несколько мегаэлектронвольт.

Сечения ядерных реакций на быстрых нейтронах в большинстве случаев лежат в пределах 0,01 – 1 барн. Более слабое взаимодействие быстрых нейтронов с ядрами приводит к двум важным аналитическим особенностям. Значительно падает

чувствительность анализа и уменьшается влияние вещества пробы на поток нейтронов (эффект экранирования).

Взаимодействие быстрых нейтронов с ядрами элементов может протекать по нескольким каналам, которые часто связаны с изменением заряда ядра. Эта особенность ядерных взаимодействий быстрых нейтронов, с одной стороны, облегчает подбор подходящей ядерной реакции, а с другой стороны, создает источник взаимных помех при определении соседних элементов, что может затруднить получение надежных и точных результатов.

1.4 Уравнение активации

В результате ядерной реакции (n, γ) с определенным изотопом элемента образуется радиоактивный продукт с характерной схемой распада. Наведенная активность этого продукта пропорциональна количеству исходного изотопа, из которого он образуется. Полное содержание элемента можно рассчитать, если известен его изотопный состав.

Скорость образования ядер радиоактивного изотопа определяется двумя процессами: накоплением возбужденных ядер в результате ядерной реакции и их убылью при радиоактивном распаде (рис. 1.2). Изменение числа радиоактивных ядер в процессе облучения пробы в потоке нейтронов описывается уравнением

$$\frac{dN}{dt} = RN_0 - \lambda N, \quad (1.4.1)$$

где N – число радиоактивных ядер;

N_0 – число ядер активируемого изотопа;

R – скорость реакции захвата нейтрона ядром;

λ – постоянная распада, с^{-1} ; $\lambda = 0,693/T_{1/2}$;

$T_{1/2}$ – период полураспада радиоактивного изотопа, с.

Интегрирование уравнения (1.4.1), если считать R и N_0 постоянными, дает количество радиоактивных ядер за определенное время облучения (irradiation) t_{ir} :

$$N(t_{ir}) = \frac{RN_0}{\lambda} (1 - e^{-\lambda t_{ir}}).$$

Так как активность (число распадов в единицу времени) активированного изотопа в момент окончания облучения $A = \lambda N$, то получаем

$$A(t_{ir}) = RN_0(1 - e^{-\lambda t_{ir}}). \quad (1.4.2)$$

После извлечения образца из активной зоны изменение числа радиоактивных ядер описывается уравнением вида

$$\frac{dN(t_{ir}, t_d)}{dt} = -\lambda N(t_{ir}, t_d),$$

где t_d – время между концом облучения и началом измерения или время распада (decay).

Активность к началу измерения

$$A(t_{ir}, t_d) = RN_0(1 - e^{-\lambda t_{ir}})e^{-\lambda t_d}. \quad (1.4.3)$$

В процессе измерения γ -излучения облученного образца спектрометром за время измерения t_m (measurement) распадается следующее количество радиоактивных ядер:

$$N(t_{ir}, t_d, t_m) = \int_{t_d}^{t_d+t_m} N(t_{ir}, t_d, t_m) dt.$$

Активность изотопа во время измерения

$$A(t_{ir}, t_d, t_m) = RN_0(1 - e^{-\lambda t_{ir}})e^{-\lambda t_d}(1 - e^{-\lambda t_m}). \quad (1.4.4)$$

Уравнение (1.4.4) носит название “уравнение активации” для радионуклидов.

Учитывая, что исходное число ядер активированного изотопа $N_0 = (N_a \theta) m / M$, уравнение активации запишем в виде

$$A = R \frac{m}{M} N_a \theta (1 - e^{-\lambda t_{ir}}) e^{-\lambda t_d} (1 - e^{-\lambda t_m}), \quad (1.4.5)$$

где m – масса элемента, г;

N_a – число Авогадро, моль⁻¹;

M – молярная масса элемента;

θ – доля активирующегося изотопа в естественной смеси изотопов;

R – скорость реакции по захвату нейтронов.

Этому уравнению соответствует заштрихованная площадь на рис. 1.2.

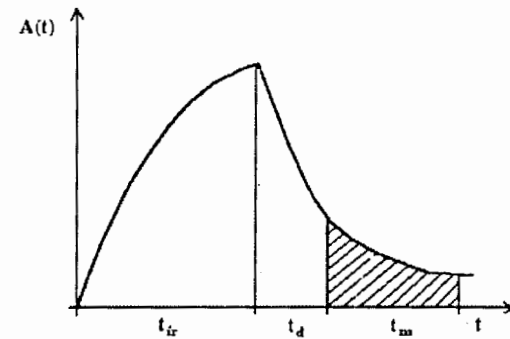


Рис. 1.2. Кривая образования и распада радиоактивных ядер

1.5 Вывод уравнения активации с учетом энергетического распределения нейтронов

Анализируемые образцы чаще всего облучают в центре активной зоны, в области максимальных потоков нейтронов. Канал для облучения тепловыми нейтронами расположен в замедлителе на некотором расстоянии от топливных элементов. Полный нейтронный поток, проходящий через образец, помещенный в этот канал, состоит в основном из тепловых нейтронов с максвелловским распределением по скоростям, из некоторой доли резонансных нейтронов, распределение которых по энергиям подчиняется закону $1/E$, и из определенного количества быстрых нейтронов.

В уравнении активации (1.4.5) величину R можно представить как интеграл

$$R = \int_0^{\infty} n(v) v \sigma(v) dv, \quad (1.5.1)$$

где v – скорость нейтронов, м/с;

$\sigma(v)$ – сечение взаимодействия нейтронов со скоростью v , м²;

$n(v)dv$ – плотность нейтронов, имеющих скорость в интервале от v до $v+dv$, м⁻³.

С учетом распределения нейтронов по энергиям интеграл (1.5.1) будет равен сумме двух интегралов:

$$R = \int_0^{v_{cd}} n(v) v \sigma(v) dv + \int_{v_{cd}}^{\infty} n(v) v \sigma(v) dv. \quad (1.5.2)$$

Здесь первый интеграл описывает скорость реакции для тепловых нейтронов. $E_{cd} = 0,55$ эВ – энергия кадмиевого порога. Все нейтроны, имеющие энергию ниже

данного значения (тепловые), поглощаются кадмиевым экраном. Второй интеграл описывает скорость реакции с эпитепловыми нейтронами.

Вычисление первого интеграла дает

$$\int_0^{v_{cd}} n(v)v\sigma(v)dv = v_0\sigma_0 \int_0^\infty n(v)dv = v_0\sigma_0 n, \quad (1.5.3)$$

где $n = \int_0^{v_{cd}} n(v)dv$ – плотность тепловых нейтронов;

v_0 – наиболее вероятная скорость нейтронов, равная при 20 °С 2200 м/с;

σ_0 – сечение активации тепловыми нейтронами при 25 эВ.

Принимая во внимание, что поток численно равен плотности нейтронов n (м⁻³), умноженной на среднюю скорость нейтронов v_0 (м/с), получим $\phi_{th} = nv_0$ (м⁻²с⁻¹) – поток тепловых (thermal) нейтронов.

$$\int_0^{v_{cd}} n(v)v\sigma(v)dv = \phi_{th}\sigma_0. \quad (1.5.4)$$

Второй интеграл может быть представлен как функция энергии нейтронов.

Интеграл $I_0 = \int_{E_{cd}}^{E_{max}} \frac{\sigma(E_n)dE_n}{E_n}$ называется *резонансным интегралом*

$$\int_{v_{cd}}^\infty n(v)v\sigma(v)dv = \phi_{epi} \int_{E_{cd}}^{E_{max}} \frac{\sigma(E_n)dE_n}{E_n} = \phi_{epi} I_0, \quad (1.5.5)$$

где ϕ_{epi} – поток эпитепловых (epithermal) нейтронов.

Величины сечения захвата и резонансного интеграла приведены в табл. 1.2.

Таблица 1.2. Сечение захвата (σ_0) и резонансный интеграл (I_0) для некоторых активированных ядер [9]

Ядра	σ_0 , б	I_0 , б	Ядра	σ_0 , б	I_0 , б
²³ Na	0.4	0.31	⁶³ Cu	4.5	5.0
²⁶ Mg	0.038	0.026	⁷⁵ As	4.3	61
²⁷ Al	0.23	0.17	⁸¹ Br	2.4	60
³⁷ Cl	0.43	0.30	¹⁰⁹ Ag	91	1400
⁴⁸ Ca	1.09	0.89	¹³⁹ La	8.9	11.8
⁵⁰ Cr	4.9	2.7	¹⁵² Sm	206	2970
⁵¹ V	15.9	7.8	¹⁵¹ Eu	9200	3300
⁵⁵ Mn	13.3	14.0	¹⁸⁶ W	37.9	485
⁵⁸ Fe	1.28	1.7	¹⁹¹ Ir	954	3500
⁵⁹ Co	37.2	74	¹⁹⁷ Au	98.7	1550

Из определения резонансного интеграла видно, что поток эпитепловых нейтронов пропорционален $1/E_n$. Но более точные результаты для скорости активации получатся, если мы учтем, что спектр эпитепловых нейтронов лучше описывается зависимостью $1/E_n^{1+\alpha}$:

$$I_0(\alpha) = \int_{E_{cd}}^{E_{max}} \frac{\sigma(E_n)dE_n}{E_n^{1+\alpha}}, \quad (1.5.6)$$

где α – эпитепловой спектральный формфактор. Его величина (в энергетическом интервале $E=1-10^5$ эВ, в котором активируется большая часть ядер) для спектра эпитепловых нейтронов в каналах Ch1-Ch3 реактора ИБР-2 отрицательна и лежит в интервале от -1,168 до -0,085 (табл. 1.3).

Таблица 1.3 Параметры спектра эпитепловых нейтронов в каналах Ch1-Ch3 для различных энергетических интервалов [8]

Канал	Энергетический интервал, эВ	$\phi_{epi} \times 10^{11}$ (с ⁻¹ см ⁻²)	α	χ^2
Ch1	$E=1-10^3$	1.36±0.03	-0.085±0.005	2.44
Ch1	$E=1-10^3$	1.15±0.05	-0.098±0.007	4.39
Ch1	$E=1-10^4$	1.33±0.03	-0.092±0.004	2.58
Ch1	$E=1-10^4$	1.16±0.05	-0.101±0.004	4.57
Ch1	$E=1-10^5$	1.06±0.03	-0.143±0.003	13.0
Ch2	$E=1-10^3$	1.16±0.03	-0.089±0.005	1.90
Ch2	$E=1-10^4$	1.15±0.03	-0.096±0.003	4.77
Ch2	$E=1-10^5$	0.80±0.03	-0.168±0.005	15.0
Ch3	$E=1-10^3$	2.98±0.06	-0.100±0.005	0.82
Ch3	$E=1-10^4$	2.88±0.05	-0.112±0.004	1.28
Ch3	$E=1-10^5$	2.58±0.04	-0.139±0.004	5.30

Подставляя (1.5.4) и (1.5.5) в (1.5.2), получим

$$R = \phi_{th}\sigma_0 + \phi_{epi}I_0. \quad (1.5.7)$$

Произведем некоторые преобразования:

$$R = \phi_{th}\sigma_0 \left(1 + \frac{\phi_{epi}I_0}{\phi_{th}\sigma_0}\right).$$

$$R = \phi_{th} \sigma_0 \left(1 + \frac{Q(\alpha)}{f}\right),$$

$$R = \phi_{th} \sigma_{eff}, \quad (1.5.8)$$

где $\sigma_{eff} = \sigma_0 \left(1 + \frac{Q(\alpha)}{f}\right)$ – эффективное сечение активации;

$Q(\alpha) = \frac{I_0(\alpha)}{\sigma_0}$ – отношение резонансного интеграла к сечению активации для

тепловых нейтронов;

$f = \frac{\phi_{th}}{\phi_{epi}}$ – отношение потоков тепловых и эпитепловых нейтронов.

Подставим (1.5.8) в уравнение активации (1.4.5):

$$A = \phi_{th} \sigma_{eff} \frac{m}{M} N_A \theta (1 - e^{-\lambda_n}) e^{-\lambda_d} (1 - e^{-\lambda_m}). \quad (1.5.9)$$

Таким образом, мы получили уравнение активации с учетом энергетического распределения нейтронов.

1.6 Вычисление площади пика

Спектр регистрируемого γ -излучения на выходе гамма-спектрометра получается в виде амплитудного распределения. Пик, соответствующий энергии γ -кванта, носит название *фотопика*. Положение максимума пика соответствует энергии регистрируемого γ -излучения, а площадь под пиком служит мерой интенсивности γ -излучения данной энергии. Форма фотопика приблизительно аналогична по форме распределению Гаусса, и его площадь легко определить, используя соотношение

$$S \sim \eta N_{max}, \quad (1.6.1)$$

где N_{max} – число отсчетов в максимуме пика;

η – разрешающая способность гамма-спектрометра, определяемая как отношение ширины γ -линии на половине ее высоты к энергии линии $\eta = \Delta E/E$.

Гамма-спектрометрия позволяет просто определять абсолютную активность. Активность радиоактивного изотопа определяется по формуле

$$A = \frac{S}{\epsilon \gamma}, \quad (1.6.2)$$

где S – площадь пика, имп./с;

γ – квантовый выход, т.е. вероятность данного γ -перехода;

ϵ – фотоэффективность спектрометра, т.е. вероятность того, что испущенный γ -квант будет зарегистрирован.

Количество активированного элемента в образце можно определить, вычислив площадь фотопика.

Из (1.6.2) и (1.5.9) следует

$$S = \gamma \epsilon A = \gamma \epsilon \phi_{th} \sigma_{eff} N_A \theta \frac{m}{M} (1 - e^{-\lambda_n}) e^{-\lambda_d} (1 - e^{-\lambda_m}). \quad (1.6.3)$$

Несмотря на то, что испускаемые фотоны имеют энергию в пределах от десятков кэВ до МэВ и высокую проникающую способность, они могут поглощаться или рассеиваться в самом образце. Этот эффект называется *самопоглощением*. Также возможна одновременная регистрация двух и более фотонов. Это так называемый эффект *самоэкранирования*. Приближение (1.6.3) действительно, когда эффектами самопоглощения и самоэкранирования пренебрегают.

1.7 Определение изотопного состава

Конечным результатом проводимого НАА должна быть информация об элементном составе анализируемых проб. Количественное определение содержания элементов в образцах возможно двумя методами: абсолютным и относительным.

1.7.1 Абсолютный метод

Количество элемента определяется по измеренной абсолютной активности A , известным данным для условий облучения и измерения (плотность потока нейтронов ϕ_{th} , время облучения t_{ir} , время распада t_d и измерения t_r) и табличным значениям ядерных констант: сечения активации σ_{eff} , молярной массы элемента M , распространенности активируемого изотопа θ , периода полураспада радиоизотопа, образующегося в процессе активации $T_{1/2}$, а также по спектрометрическим характеристикам измерительной аппаратуры. Несмотря на кажущуюся простоту

такого подхода, этот метод может привести к значительной погрешности конечного результата определения содержания (концентрации) элементов.

Обычно затруднено определение плотности потока активируемых частиц в зоне облучения, не всегда точно известны сечения активации.

Кроме того, необходимо с достаточно большой точностью проводить абсолютную калибровку спектрометра по светосиле и эффективности регистрации гамма-квантов (фотоэффективности).

1.7.2 Относительный метод

Метод эталонов. Одновременно с анализируемой пробой облучают точно известное количество определяемого элемента (эталон). После облучения эталон и исследуемый образец измеряют в одинаковых условиях. Количество элемента в пробе рассчитывают из соотношения

$$\rho = \frac{\left(\frac{S}{mD\Lambda}\right)_x}{\left(\frac{S}{mD\Lambda}\right)_c}, \quad (1.7.1)$$

в котором

ρ – концентрация, г·г⁻¹;

$D = e^{-\lambda t}$;

$\Lambda = (1 - e^{-\lambda t_w})$.

Индексы x и c относятся к образцу и эталону соответственно.

Как видно, в этом методе нет необходимости точно знать плотность потока нейтронов, она лишь должна быть постоянной по всему объему, занимаемому пробой и эталоном. Отпадает требование к постоянству интенсивности активирующего излучения во времени. Погрешность величины сечения активации и эффективности измерения в энергетическом спектре вторичного излучения уже не оказывает влияния на конечные результаты. Применение относительных методов облегчает проведение НАА и повышает точность определения.

Метод одного компаратора (comparison – сравнение) имеет преимущества тогда, когда интенсивность активирующего излучения сильно меняется при проведении серийных элементопределений. Сущность метода состоит в контроле за

интенсивностью активирующего излучения. В качестве компараторов используют известное количество элемента (обычно это золотая фольга или проволока). Между активностью компаратора A_c и средней плотностью потока активирующего излучения в пробе ϕ должна быть прямая связь типа $A_c = k \cdot \phi$, где k – коэффициент пропорциональности. Облучая вместе образец и компаратор, измеряют величины A_c и A_x . Выражение для определения количества анализируемого элемента

$$\rho = \frac{\left(\frac{S}{PD\Lambda m}\right)_x}{\left(\frac{S}{PD\Lambda m}\right)_c} k, \quad (1.7.2)$$

где $P = \frac{(1 - e^{-\lambda t_w})}{\lambda}$; $k = \frac{M \gamma_c \varepsilon_c \theta_c \sigma_{\text{эф.с}}}{M_c \gamma_c \varepsilon_c \theta_c \sigma_{\text{эф.с}}}$ – коэффициент пропорциональности. Индекс x

относится к образцу, а c – к компаратору.

Метод двух компараторов. В этом случае компаратор состоит из двух изотопов. Метод позволяет полностью избавиться от влияния флуктуации потока на конечный результат.

Концентрация определяемого элемента может быть вычислена следующим образом:

$$\rho = \frac{SM}{m \phi_{\text{th}} N_A \theta \sigma_0 \left(1 - \frac{Q_0}{f}\right) P D \Lambda}, \quad (1.7.3)$$

где $\phi_{\text{th}} = \frac{X_c^a I_{0,c}^a - X_c^b I_{0,c}^b}{\sigma_{0,c}^a I_{0,c}^a - \sigma_{0,c}^b I_{0,c}^b}$, $f = \frac{(X_c^a I_{0,c}^b - X_c^b I_{0,c}^a)}{(X_c^b \sigma_{0,c}^a - X_c^a \sigma_{0,c}^b)}$ и $X = \frac{S_c M_c}{m_c N_A \theta_c \gamma_c \varepsilon_c P_c D_c \Lambda_c}$.

Индексы a и b относятся к компараторам с массами m_c^a и m_c^b соответственно.

1.8 Интерферирующие реакции

Уже отмечалось, что при облучении тепловыми нейтронами в реакторе в большинстве случаев протекает основная реакция (n, γ). Однако присутствие в потоке некоторой доли быстрых нейтронов и жестких γ -квантов может вызвать интерферирующие ядерные реакции, которые приводят к образованию того же

радиоактивного изотопа, что и по реакции (n, γ) , но на изотопах других элементов. На реакторных нейтронах возможны следующие реакции:

- 1) $A_Z^{M-1}(n, \gamma)A_Z^M$, 2) $A_{Z+1}^M(n, p)A_Z^M$, 3) $A_{Z+2}^{M+3}(n, \alpha)A_Z^M$,
 4) $A_Z^{M+1}(n, 2n)A_Z^M$, 5) $A_Z^{M+1}(\gamma, n)A_Z^M$, 6) $A_{Z+1}^{M+1}(\gamma, p)A_Z^M$.

Четвертая и пятая реакции никакой опасности не представляют, так как они протекают на изотопах определяемого элемента. В силу малых величин сечений этих реакций по сравнению с (n, γ) их вклад в активность образующегося радиоактивного изотопа A_Z^M очень мал. В результате второй, третьей и шестой реакции радиоактивный изотоп A_Z^M образуется на ядрах, имеющих заряд на одну или две единицы больше. Таким образом, два элемента, стоящих в периодической таблице справа от определяемого, могут оказывать влияние на результаты анализа. Уровень помех зависит от величины потока быстрых нейтронов в месте облучения. Величину возможной систематической ошибки, возникающей при определении двух соседних элементов, можно оценить [10, 11]. Пусть B – радиоактивный изотоп, образующийся из определяемого элемента по основной реакции (n, γ) ; B_i – радиоактивный изотоп определяемого элемента, но образующийся по interfering reaction (n, p) или (n, α) из соседнего мешающего элемента. Радиоактивные изотопы B и B_i идентичны. Для оценки величины помехи введем коэффициент l , который показывает, во сколько раз отличаются активности радиоизотопов при облучении проб элементов массой 1 г. В соответствии с уравнением активации (1.8.9) получаем

$$l = \frac{A_{B_i}}{A_B} = \frac{M\theta\phi_f\sigma_f}{M_i\theta\phi_{in}\sigma_{eff}} \quad (1.8.1)$$

где ϕ_f – поток быстрых (fast) нейтронов;
 σ_f – сечение активации при interfering reactions.

Коэффициент l численно равен “кажущейся” массовой добавке к количеству определяемого элемента, которая образуется по interfering nuclear reaction на каждый 1 г мешающего элемента (табл. 1.4).

Таблица 1.4. Коэффициент l для учета систематической погрешности, вводимой некоторыми interfering reactions [12]

Основная реакция	Интерферирующая реакция	l , нг/г
$^{23}\text{Na}(n, \gamma)^{24}\text{Na}$	$^{24}\text{Mg}(n, p)^{24}\text{Na}$ $^{27}\text{Al}(n, \alpha)^{24}\text{Na}$	$3 \cdot 10^5$ $1,5 \cdot 10^6$
$^{26}\text{Mg}(n, \gamma)^{27}\text{Mg}$	$^{27}\text{Al}(n, p)^{27}\text{Mg}$	$9 \cdot 10^8$
$^{27}\text{Al}(n, \gamma)^{28}\text{Al}$	$^{28}\text{Si}(n, p)^{28}\text{Al}$ $^{31}\text{P}(n, \alpha)^{28}\text{Al}$	$3 \cdot 10^7$ $9 \cdot 10^6$
$^{41}\text{K}(n, \gamma)^{42}\text{K}$	$^{42}\text{Ca}(n, p)^{42}\text{K}$ $^{45}\text{Sc}(n, \alpha)^{42}\text{K}$	–* $1,5 \cdot 10^6$
$^{51}\text{V}(n, \gamma)^{52}\text{V}$	$^{52}\text{Cr}(n, p)^{52}\text{V}$	$1 \cdot 10^4$
$^{50}\text{Cr}(n, \gamma)^{51}\text{Cr}$	$^{54}\text{Fe}(n, \alpha)^{51}\text{Cr}$	$4 \cdot 10^5$
$^{55}\text{Mn}(n, \gamma)^{56}\text{Mn}$	$^{56}\text{Fe}(n, p)^{56}\text{Mn}$	$7 \cdot 10^4$
$^{58}\text{Fe}(n, \alpha)^{59}\text{Fe}$	$^{59}\text{Co}(n, p)^{59}\text{Fe}$	$2,3 \cdot 10^8$
$^{63}\text{Cu}(n, \gamma)^{64}\text{Cu}$	$^{64}\text{Zn}(n, p)^{64}\text{Cu}$	$5 \cdot 10^6$

* Сечение реакции неизвестно.

2. Проведение НАА с использованием ПТУ РЕГАТА на реакторе ИБР-2 ЛНФ ОИЯИ

2.1 Общий ход НАА

Основные этапы НАА представлены на рис. 2.1.



Рис. 2.1. Схема проведения НАА

2.2 Подготовка образцов к облучению

Подготовка образцов к облучению проводится в специально оборудованной химической лаборатории с использованием шпателей и пинцетов из полимерных материалов с целью исключения попадания посторонних загрязнителей. В большинстве случаев пробы измельчают, гомогенизируют и сушат при определенной температуре до постоянной массы. Для каждого вида материала проб существуют свои правила пробоподготовки.

Подготовленную пробу помещают в контейнеры для облучения. В качестве материалов для них используют полиэтилен, алюминий и графит. Внутренний объем контейнера около 5 см^3 при внешнем диаметре 26 мм (рис. 2.2). Алюминиевые контейнеры по размерам близки к полиэтиленовым, но имеют больший полезный объем. Любой из этих материалов имеет низкое сечение поглощения тепловых нейтронов и устойчив к радиации, хотя у каждого материала есть свои особенности.

При наличии в потоке быстрых нейтронов в алюминии по реакции (n, α) образуется ^{24}Na с жестким γ -излучением с периодом полураспада 15 ч. Изготовление контейнеров из графита – очень трудоемкий процесс, а полиэтилен становится хрупким после непродолжительного облучения. Поэтому его используют исключительно для определения короткоживущих изотопов.

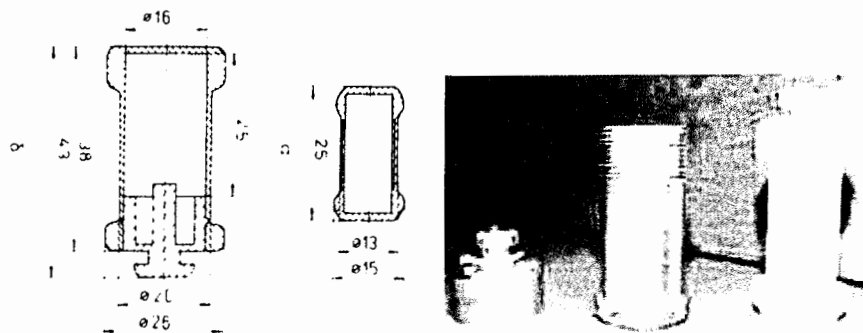


Рис. 2.2. Чертеж полиэтиленовых контейнеров
(транспортного и внутренней капсулы для образца)

и фотография алюминиевого и полиэтиленового транспортных контейнеров

2.3 Процесс облучения на реакторе ИБР-2

Работы по облучению исследуемых образцов в Лаборатории нейтронной физики им. И.М. Франка ОИЯИ проводятся на высокопоточном импульсном быстром реакторе ИБР-2 с использованием пневмотранспортной установки (ПТУ) РЕГАТА.

Активная зона реактора ИБР-2 имеет вид неправильного шестигранника, состоящего из сборок топливных элементов. В качестве топлива используется PuO_2 (двуокись плутония). На реакторе применяется трехконтурная охлаждающая система. В первом и втором контуре охлаждение происходит с помощью жидкого натрия, а в третьем – с помощью воздуха. Активная зона размещается в стальном кожухе с двойными стенками и окружена неподвижным отражателем с контрольными стержнями защиты и системой диагностики. Вокруг располагаются три водяных замедлителя, два из которых гребенчатого типа (рис. 2.3 и 2.4).

На реакторе ИБР-2, в отличие от стационарных реакторов, нейтроны и γ -кванты генерируются периодическими короткими импульсами. Важными характеристиками при этом кроме средней плотности потока нейтронов становятся длительность импульсов, частота их повторений, плотность потока частиц в импульсе, фон между импульсами.

Генерация нейтронных импульсов в реакторе ИБР-2 происходит за счет периодического изменения коэффициента размножения нейтронов механическими способами (вращением части отражателя). Таких отражателей на реакторе два. Один из них (основной) вращается с частотой 50 об./с и с большой скоростью проходит активную зону, второй (дополнительный) вращается с частотой 5 об./с. Основные импульсы нейтронов образуются при одновременном прохождении активной зоны обоими отражателями. При прохождении этой зоны только основным отражателем тоже создаются импульсы ядерного излучения (спутники), но их амплитуда (мощность дозы) в 2500 раз меньше амплитуды основного импульса. Кроме спутников между основными импульсами существует постоянный фон, уровень которого в 17000 раз меньше амплитуды основного импульса. Основной импульс по быстрым нейтронам имеет форму, аналогичную распределению Гаусса, с полушириной 260 мкс, а спутники с полушириной 50 мкс.

Основные характеристики реактора ИБР-2 [13, 14]

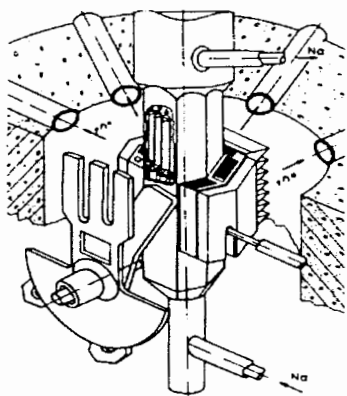
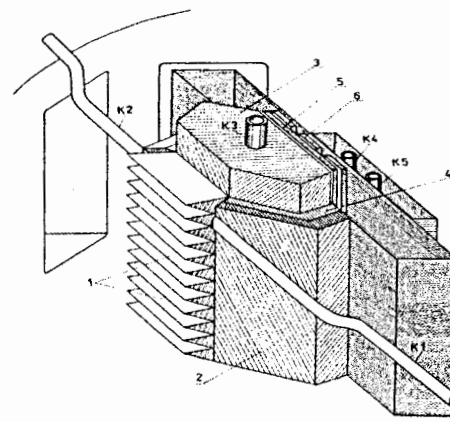


Рис. 2.3. Схематический вид ИБР-2 [13]

Средняя тепловая мощность	2 МВт
Пиковая мощность в импульсе	1500 МВт
Мощность в промежутках между импульсами	0.1 МВт
Частота следования нейтронных импульсов	5 и 25 Гц
Полуширина импульса быстрых нейтронов	215 мкс
Плотность потока тепловых нейтронов с поверхности замедлителя	
– средняя	$10^{13} \text{ н}\cdot\text{см}^{-2}\cdot\text{с}^{-1}$
– в максимуме	$10^{16} \text{ н}\cdot\text{см}^{-2}\cdot\text{с}^{-1}$
Длительность импульса тепловых нейтронов	320 мкс
Плотность потока быстрых нейтронов в центральном канале реактора	
– средняя	$1.5 \times 10^{14} \text{ н}\cdot\text{см}^{-2}\cdot\text{с}^{-1}$
– в максимуме	$1.3 \times 10^{13} \text{ н}\cdot\text{см}^{-2}\cdot\text{с}^{-1}$

Конструкция подвижного отражателя ИБР-2 позволяет реактору генерировать излучения с частотой 5, 25 и 50 Гц. Для получения тепловых и резонансных нейтронов вокруг активной зоны реактора установлены водяные замедлители со средней толщиной 5 см. Поэтому спектр нейтронов в пучках (близкий к спектру деления) обогащается тепловыми и резонансными нейтронами. Кроме нейтронов реактор излучает и γ -лучи [14].



- 1 – гребенчатый водяной замедлитель
- 2 – плоский водяной замедлитель
- 3 – активная зона
- 4 – стационарные отражатели
- 5, 6 – подвижные отражатели
- К1 – К5 – каналы облучения

Рис. 2.4. Расположение каналов облучения ПТУ РЕГАТА относительно активной зоны реактора ИБР-2 [14]

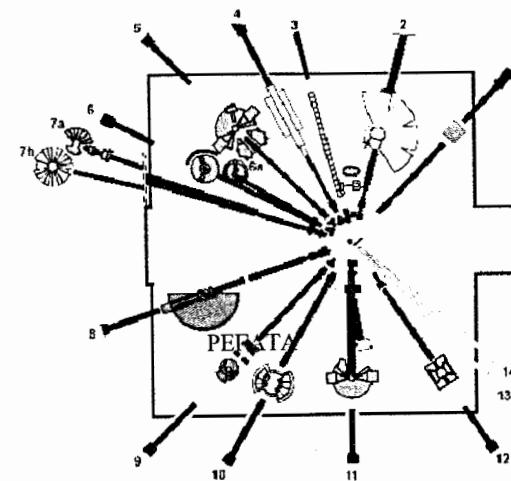


Рис. 2.5. Схема расположения установки РЕГАТА относительно нейтронных пучков реактора ИБР-2

Для проведения работ по активационному анализу реактор ИБР-2 оборудован пятью каналами для облучения образцов (рис. 2.4). Два канала К1(Ch1) и К2(Ch2) расположены у торцов гребенчатого замедлителя. Канал К3 расположен в центре активной зоны, а каналы К4 и К5(Ch3) – в замедлителе, расположенном за подвижным отражателем. Все каналы внутри сухие. Ch1 и Ch2 охлаждаются воздухом, Ch3 – водой. Характеристики каналов облучения при мощности реактора 2 МВт приведены в табл. 2.1.

Таблица 2.1. Физические параметры каналов облучения [15]

Номер канала	$\Phi_{th} \times 10^{12}$, $n \cdot \text{см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$ $E=0 \div 0.55$ эВ	$\Phi_{epi} \times 10^{12}$, $n \cdot \text{см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$ $E=0.55 \div 10^5$ эВ	$\Phi_{fast} \times 10^{12}$, $n \cdot \text{см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$ $E=0.1 \div 25$ МэВ	$\langle E_{fast} \rangle$, МэВ $E=0.1 \div 25$ МэВ	Температура, °С
Ch1	1.58	3.34	4.34	0.91	
Ch1 (Cd экран)	0.023	3.31	4.32	0.88	70
Ch2	1.23	2.96	4.10	0.92	60
Ch3	4.24	7.50	7.70	0.76	30–40

Подача образцов в каналы Ch1 и Ch2 осуществляется пневмотранспортной системой РЕГАТА (рис 2.6). Капсулы с пробами доставляются к месту облучения сжатым воздухом. На рис. 2.7 показана схема перемещения транспортного контейнера в активной зоне реактора.

В целях радиационной безопасности блоки загрузки и выгрузки, а также измерительная аппаратура расположены далеко от активной зоны реактора и размещены в специальных помещениях. Средняя скорость движения образцов по трассам 10 м/с (длина трасс 30–40 м). Время транспортировки капсул на облучение или обратно 5–10 с. Минимальное время нахождения образца в месте облучения около 3 с. Время облучения образцов в полиэтиленовых контейнерах ограничивается радиационной стойкостью материала и составляет 30 мин при мощности реактора 2 МВт. Установка РЕГАТА снабжена автоматами для быстрого (1,5 с) извлечения капсул с облучаемой пробой из полиэтиленовых транспортных контейнеров.

Длительное облучение проводится в алюминиевых контейнерах. В каждом канале можно одновременно облучать до 7 контейнеров. Часто транспортный контейнер используется как рабочая капсула.

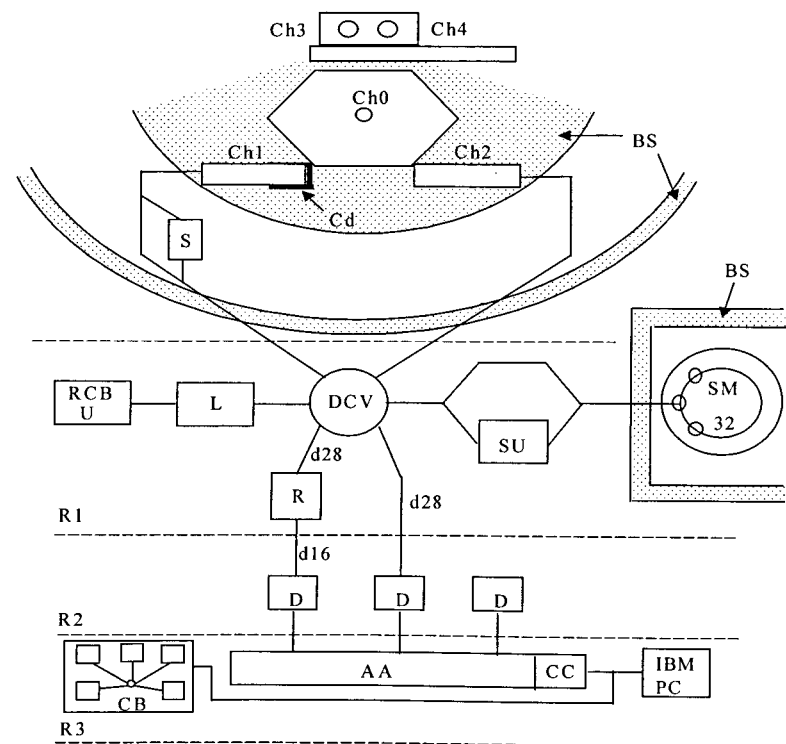


Рис. 2.6. Схема пневмотранспортной системы РЕГАТА [16]

- Ch1-Ch3 – каналы облучения;
- S – хранилище высокоактивных образцов,
- RCBU – радиохимический бокс;
- DCV – распределительный модуль;
- L – загрузочный модуль (до 10 образцов)
- SU – разгрузочный модуль;
- BS – модуль сортировки образцов;
- SM – хранилище на 32 образца;
- R – модуль перепаковки образцов;
- AA – амплитудный анализатор;
- D1–D3 – Ge(Li)-детекторы;
- CB – панель управления пневмотранспортной установкой

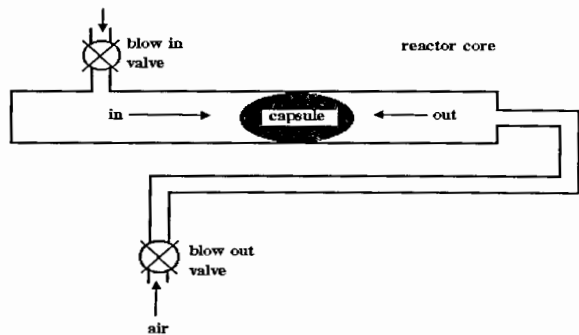


Рис. 2.7. Перемещение контейнера в активной зоне реактора в зависимости от направления воздушного потока [17]

Спектрометрическое оборудование

Спектрометрическое оборудование предназначено для регистрации гамма-спектрометров наведенной активности облученных образцов. Гамма-спектрометр состоит из следующих основных частей: источника высокого напряжения, полупроводникового детектора, предусилителя, усилителя импульсов, аналого-цифрового преобразователя (АЦП), анализатора (рис 2.8).



Рис. 2.8. Блок-схема гамма-спектрометрической системы

Детектор

Принцип работы полупроводниковых детекторов подобен принципу действия ионизационных камер. В детекторе со сравнительно низкой проводимостью создается

электрическое поле. Когда заряженная частица проникает в рабочий объем детектора, она затрачивает свою энергию на образование электронно-дырочных пар.

Образующиеся заряды собираются на электродах, давая на нагрузочном сопротивлении импульс, амплитуда которого пропорциональна энергии, потерянной частицей в рабочем объеме детектора. Если пробег частицы полностью укладывается в пределах рабочего объема, то высота импульса пропорциональна полной энергии частицы.

Конструкция всех полупроводниковых детекторов очень проста. Типичная конфигурация детектора представлена на рис. 2.10. Рабочим объемом детектора служит кристалл Ge(Li). Форма и размер кристалла в зависимости от типа проводимости (*p*- или *n*-тип) бывает либо коаксиальной, либо планарной. Кристалл чистого Ge разрушается при комнатной температуре и не может транспортироваться и храниться без жидкого азота, поэтому рабочие части детектора находятся в алюминиевом корпусе в вакууме при температуре жидкого азота. Охлаждение кристалла детектора во время работы происходит через медную трубку, погруженную в сосуд Дьюара.

Разрешающая способность и эффективность регистрации гамма-излучения детектором – главные характеристики полупроводниковых детекторов. *Разрешающая способность* измеряется шириной пика на половине его высоты.

Разрешение детектора принято характеризовать разрешением на γ -линиях ^{60}Co (1332 кэВ) и ^{57}Co (122 кэВ). Разрешение детекторов, используемых на РЕГАТЕ, составляет 2,5-3 кэВ. *Эффективность регистрации детектора* – это отношение числа зарегистрированных γ -квантов к числу γ -квантов, которые попадают на входное окно детектора. Из паспортных данных всегда бывает известна *относительная эффективность регистрации*, которая измеряется относительно сцинтилляционного детектора с кристаллом Na(I) размером 3 × 3 дюйма для линии ^{137}Cs (662 кэВ). Эффективность регистрации во многом определяется геометрией рабочего объема детектора.

Источник высокого напряжения

Высокое напряжение для питания детектора подается с высоковольтного источника через дополнительные фильтры. Величина напряжения выбирается оптимальным образом для достижения наилучшего разрешения детектора.

Предусилитель

Импульс, образовавшийся на выходе детектора, попадает на предусилитель. В качестве предусилителя для Ge(Li)-детекторов обычно используются так называемые зарядочувствительные предусилители, осуществляющие сбор носителей заряда, образующегося в кристалле детектора, с минимальными потерями, позволяя при этом получить наилучшее разрешение для спектрометрического тракта. Входной каскад предусилителя выполняется на полевом транзисторе с минимальным уровнем шумов. Для уменьшения шума полевой транзистор располагается в криостате детектора при температуре жидкого азота. Коэффициент усиления предусилителя при полном поглощении гамма-кванта с энергией 1 МэВ в кристалле детектора обеспечивает на выходе предусилителя импульс с амплитудой от 100 до 500 мВ.

Усилитель

Усилитель предназначен для дальнейшего усиления и формирования импульса с предусилителя, который затем поступает на вход АЦП. Амплитуда выходного сигнала с усилителя зависит от заданного коэффициента усиления и достигает 10 В. Схема формирования импульса включает в себя дифференцирующие и интегрирующие цепи, постоянные времени которых могут изменяться с помощью переключателя от 0,5 до 6 мкс. Эта величина выбирается экспериментально и влияет на разрешение спектрометра.

Аналого-цифровой преобразователь

АЦП преобразовывает амплитуду импульса, поступающего с усилителя, в цифровой код. Он несет в себе информацию об энергии γ -кванта, попавшего в кристалл детектора. С полупроводниковым детектором используются АЦП с числом уровней квантования 4096 или 8192, в соответствии с ним выбирается число ячеек оперативной памяти анализатора.

Анализатор

Цифровой код определяет ячейки памяти анализатора, содержимое которых увеличивается на единицу при каждом новом попадании гамма-квантов определенной энергии. Таким образом, в памяти анализатора накапливается амплитудный спектр излучения.

По окончании измерения содержимое памяти анализатора считывается в память персонального компьютера.

Спектр облученного образца состоит из многих γ -линий, принадлежащих различным радиоактивным изотопам. Пример такого спектра приведен на рис. 2.9.

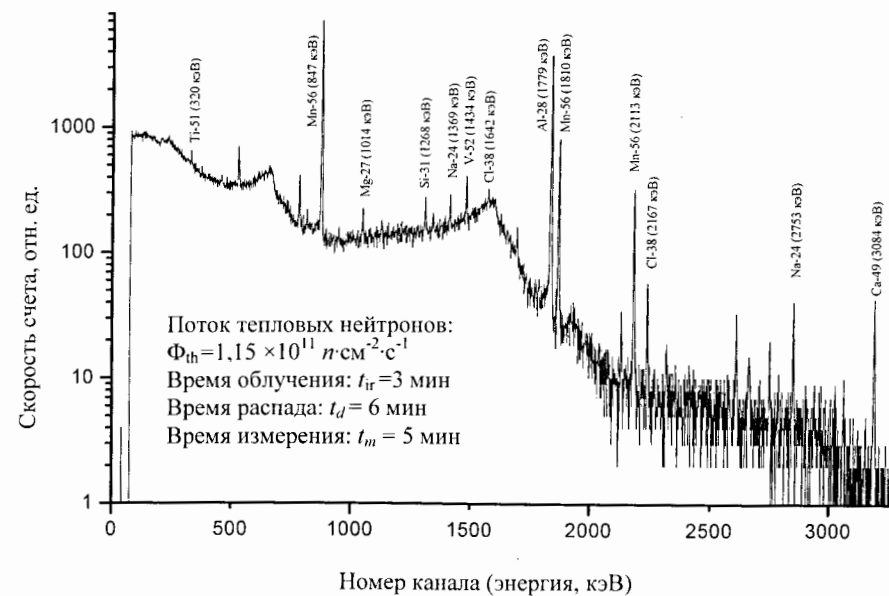


Рис 2.9. Гамма-спектр облученного образца

2.4 Обработка γ -спектра

На рис. 2.11 представлен общий ход обработки гамма-спектра. Спектр регистрируемого γ -излучения на выходе гамма-спектрометра получается в виде амплитудного распределения, причем энергия отдельной γ -линии характеризуется положением максимума соответствующего ей фотопика в определенном канале спектрометра.

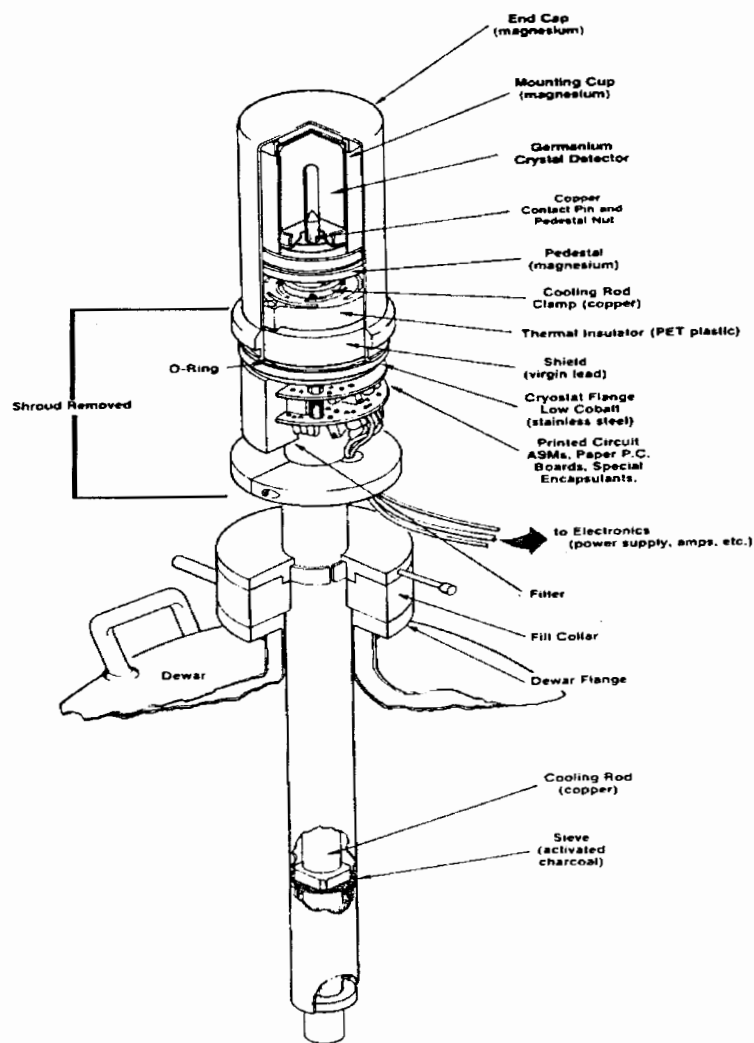


Рис. 2.10. Конструкция полупроводникового детектора [17]

При использовании γ -спектрометрии в активационном анализе обработка результатов измерений состоит из двух основных стадий: идентификации радиоизотопов и получения количественных данных.

Основные этапы обработки спектров

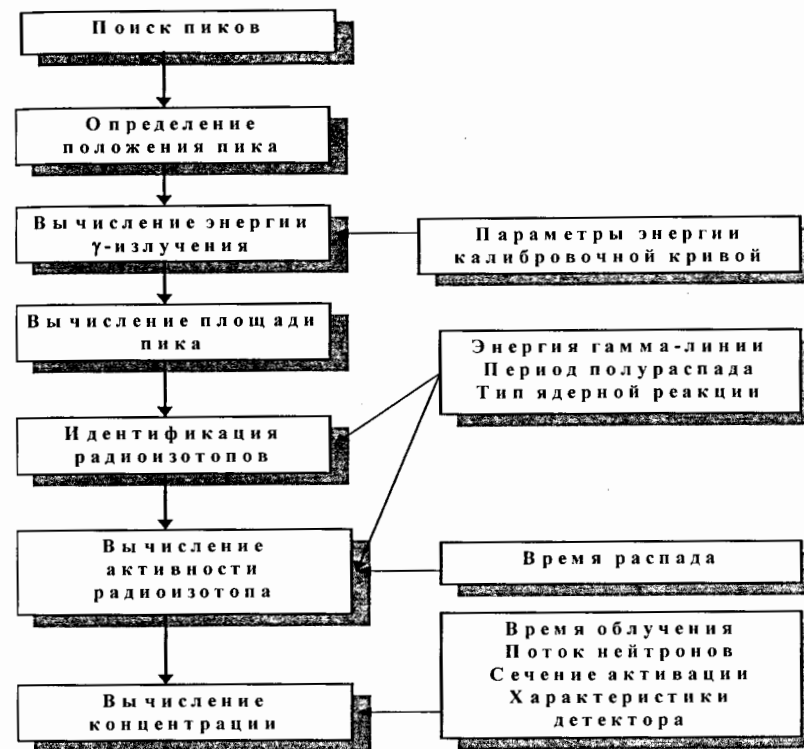


Рис. 2.11. Этапы обработки гамма-спектра

Калибровка

Для установления зависимости между энергией γ -излучения и номером канала спектрометр калибруется с помощью нескольких радиоактивных изотопов.

Для калибровки Ge(Li)-детектора используются стандартные источники гамма-излучения ^{152}Eu , ^{133}Ba . Энергетические характеристики этих источников приведены ниже.

Таблица 2.2. Энергия, кэВ

81	121,8	244,7	344,3	778,9	1085,8	1112,05	1408	3083
^{133}Ba	^{152}Eu							

На рис. 2.12 показана типичная калибровочная зависимость гамма-спектрометра на установке РЕГАТА.

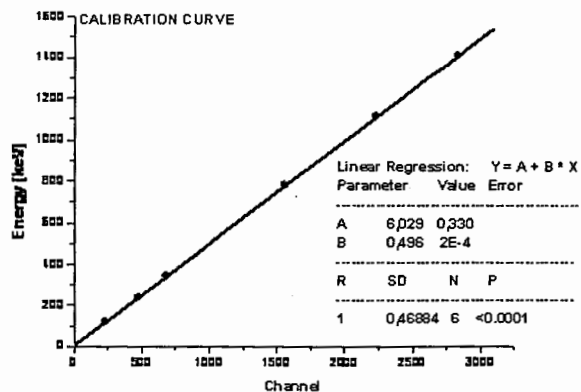


Рис. 2.12. Калибровочная зависимость

С помощью калибровочной кривой определяют энергии неизвестных линий, которые достаточно четко выделяются в спектре.

Работа со спектром

При обработке гамма-спектров следует обращать внимание на соответствие полуширины каждой линии разрешению спектрометра. Уширение γ -линии свидетельствует о том, что линия состоит из двух или более γ -линий близкой энергии. Об этом же свидетельствует искаженная форма линии. Из рассмотрения исключаются пики, обусловленные утечкой аннигиляционных квантов из кристалла, и суммированием каскадных переходов. Затем по определенным энергиям γ -линий идентифицируются радиоизотопы. Идентификация не всегда может быть однозначной. Для надежности привлекаются некоторые дополнительные данные, которые позволяют сократить круг возможных радиоизотопов. Учитывают метод облучения с его характерными ядерными реакциями, время облучения, время распада (выдержку образца), происхождение и предысторию препарата, измерение периодов полураспада γ -линий путем последовательного измерения спектра через определенные промежутки времени. При идентификации радиоизотопов большую роль играют таблицы, в

которых γ -линии расположены в порядке возрастания энергии и приведены γ -спектры радиоактивных изотопов. Для количественного определения элементного состава образца определяют площади четких, хорошо оформленных и надежно идентифицированных пиков.

Программы, включающие процедуру обработки гамма-спектра (автоматический поиск пиков, идентификацию радиоактивных изотопов и определение концентраций элементов, содержащихся в исследуемой пробе), были разработаны в ЛНФ ОИЯИ [18, 19]. Программа VACTIV предназначена для автоматического поиска пиков гамма-спектра, полученного на Ge(Li)-детекторах. Используя калибровочную кривую детектора, программа определяет положение пиков и энергию, соответствующую каждому пику, вычисляет площадь по методу наименьших квадратов. Программа ISTNEW предназначена для качественного определения изотопного состава исследуемого вещества (идентификация радионуклидов). Сравнивая данные файла, полученного на выходе программы VACTIV, с так называемыми файлами разметки, программа ISTNEW присваивает каждой энергетической линии название соответствующего изотопа. Используется три файла разметки в зависимости от периода полураспада изотопа (от 1 мин до 1 ч; от 1 ч до 1 сут; больше 1 сут). Программа MAS предназначена для количественного определения элементного состава исследуемого вещества. Вычисление концентрации элементов, содержащихся в образце, ведется одновременно четырьмя путями: абсолютным методом, методом одного или двух компараторов и с использованием эталонов сравнения. Исходными данными для программы MAS являются: файл, созданный программой ISTNEW, и интервалы времени облучения, распада, измерения; масса образца, а также другие характеристики облучательной и измерительной техники, вводимые пользователем. Конечные результаты выдаются в виде таблицы.

Лабораторная работа №1

Калибровка Ge(Li)-детекторов. Определение относительной эффективности регистрации γ -квантов Ge(Li)-детекторами

Цель работы

Получение навыков работы со спектрометрическим оборудованием. Изучение зависимости эффективности регистрации гамма-квантов от расстояния от образца до детектора. Определение относительной эффективности регистрации гамма-квантов двух детекторов.

Ход работы

1. Установить калибровочный источник ^{152}Eu в позицию измерения $h = 5$ см.
2. На компьютере, связанном с данным спектрометрическим трактом, запустить программу SRT4.COM.
 - Для начала измерения ввести команду "st" и затем номер запускаемого детектора. После этого записать время начала измерения и расстояние от образца до детектора в лабораторный журнал.
 - Затем, используя команду "em", ввести точное время остановки детектора, которое также записать в лабораторный журнал. После остановки измерения записать набранный спектр при помощи команды "wm".
3. Провести серию измерений (5 мин каждое) калибровочных спектров на разном расстоянии калибровочного источника от детектора ($h = 5; 7,5; 10; 15$ см).
4. Провести ту же серию измерений в аналогичных условиях на втором детекторе.
5. Запустить программу VACTIVE.EXE. Используя данные, указанные в теоретической части для ^{152}Eu , идентифицировать его γ -линии в полученных спектрах и записать значения площадей и соответствующие им номера каналов. Обработать все полученные спектры и сохранить с расширением *.res.
6. Используя значения калибровочных энергий и соответствующие им номера каналов, создать файл калибровки с расширением *.dat.

7. Используя отношение площадей пиков одинаковых гамма-линий в спектрах, полученных для двух детекторов, рассчитать относительную эффективность регистрации гамма-квантов.
8. Для двух детекторов построить графики зависимости эффективности регистрации от расстояния образца от поверхности детектора, используя значения площадей пиков одной, самой интенсивной линии в спектрах, измеренных на разных расстояниях от детектора.

Лабораторная работа № 2

Определение градиента плотности потока нейтронов в каналах облучения ПТУ РЕГАТА

Цель работы

Определение потока нейтронов в контейнерах с облучаемыми образцами.

Ход работы

1. Набрать спектр ОСГИ ^{152}Eu и откалибровать детектор № 3 по схеме, указанной в п. 2 лабораторной работы № 1.
2. Установить предварительно облученный монитор (^{198}Au) в позицию измерения на высоту 5 см.
3. Произвести измерение спектра компаратора в течение 5 мин на детекторе № 3 (описание проведения измерения в п. 2 лабораторной работы № 1).
4. Идентифицировать и рассчитать площадь пика ^{198}Au при помощи программы VACTIVE.EXE.
5. Выполнить измерения и обработку для мониторов из всех других контейнеров данной загрузки.
6. Используя полученные значения, построить график градиента плотности потока нейтронов в каналах облучения ПТУ РЕГАТА.

Лабораторная работа № 3

Проведение нейтронного активационного анализа образцов мхов-биоиндикаторов и идентификация изотопов элементов, содержащихся в образце

Цель работы

Получение навыков пробоподготовки, проведения нейтронного активационного анализа, идентификации изотопов элементов, содержащихся в образце.

Ход работы

1. Подготовка образцов.
2. Упаковка подготовленных образцов в полиэтиленовые контейнеры.
3. Проведение облучения образцов в канале № 2 ПТУ РЕГАТА. Упакованные образцы загружаются в канал облучения и облучаются в течение заданного времени. (Или использование ранее облученных образцов, извлеченных из хранилища отработанных образцов).
4. Измерение гамма-спектров облученных образцов на Ge(Li)-детекторах в течение заданного времени.
5. Обработка полученных спектров при помощи программы VACTIVE.EXE.
6. Идентификация линий изотопов элементов, содержащихся в образце, в соответствии с табличными данными.

Литература

- [1] Кузнецов П. А. Активационный анализ. М.: Атомиздат, 1967. 27 с.
- [2] Ostrovskaya T.M. Tables for identification of nuclides formed in nuclear reactors. JINR Preprint E14-2000-178. Dubna, 2000. Handbook of Nuclear Activation Data, IAEA, Vienna, 1987, 330 p.
- [3] Amiel S. Chemistry research and chemical techniques based on research reactors // IAEA, Vienna. 1963. P. 115; Filby R.H. Neutron Activation Analysis // Part IX (Technical Report). Pure & Appl. Chem. 1995. Vol. 67, No. 11. P. 1929-1941 (<http://old.iupac.org/publications/pac/1995/pdf/6711x1929.pdf>).
- [4] Erdtmann G. and Petri H. Nuclear Activation Analysis Techniques in Treatise on Analytical Chemistry. Vol. 14, Part I, Section K, Ch. 7. I.M. Kolthoff and P.J. Elving, eds.; New York: John Wiley, 1986. P. 419-643; Gillespie A.S., Hill W.W. // Nucleonics. 1961. Vol. 19, No. 11. P. 170.
- [5] Юз В., Шварц П. Атлас нейтронных сечений. М.: Атомиздат, 1959.
- [6] Гордеев И.В. и др. Справочник по ядерно-физическим константам. М.: Госатомиздат, 1963.
- [7] Bode P. Instrumental and organizational aspects of a neutron activation analysis laboratory. Delft University of Technology, 1996. P. 26.
- [8] Переседов В.Ф., Рогов А.Д. Моделирование и анализ энергетических спектров нейтронов для облучательных каналов реактора ИБР-2 // Краткие сообщения ОИЯИ. № 1. С.75. Дубна, 1996.
- [9] Mughabghab S.F., Divadeenam M. and Holden N.E. Neutron Cross Section. Vol.1, Neutron Resonance Parameters and Thermal Cross Sections. New York: Academic Press, 1984.
- [10] Maslov I.A. // Radiochemical Methods of Analysis. V. 1, Vienna, IAEA, 1965. P. 41.
- [11] Kemp D.M., Smales A.A. // Anal. Chem. Acta. 1960. Vol. 23. P. 410.
- [12] Frontasyeva M.V., Steinnes E. // The Analyst. 1995. Vol. 120. P. 1437-1440.
- [13] Ananiev V.D. et al. Full power start-up of the IBR-2 reactor and the first physical experiments at its beams // Atomnaya Energiya. 1984. Vol. 57, No. 4. P. 227-234.

- [14] Назаров В.М., Фронтьева М.В. Перспективы использования ИБР-2 для аналитических целей // Ядерно-физические методы анализа в контроле окружающей среды: Труды II Всесоюзного совещания. Рига, 1982.
- [15] Назаров В.М., Павлов С.С., Переседов В.Ф., Фронтьева М.В. Каналы для облучения и пневмотранспортная установка на ИБР-2. // Краткие сообщения ОИЯИ, № 6, Дубна, 1985.
- [16] Frontasyeva M.V., Pavlov S.S. REGATA Experimental Setup for Air Pollution Studies. // Problems of Modern Physics. Editors: A.N. Sissakian, D.I. Trubetskov. Dubna: JINR, 1999. P. 152-158.
- [17] Parry S. Activation spectrometry in chemical analysis. John Wiley & Sons. 1991. P. 57.
- [18] Ostrovnaya T.M., Nefedyeva L.S., Nazarov V.M., Borzakov S.B., Strelkova L.P. Software for INAA on the basis of relative and absolute methods using nuclear data base. // In Proceedings "Activation Analysis in Environment Protection". D14-93-325, Dubna: JINR. P. 319-325.
- [19] Zlokazov V.B. // Comp. Phys. Comm. 1982. V. 28. P. 27; Препринт ОИЯИ P10-82-102, Дубна, 1982.
- [20] Frontasyeva M.V. Radioanalytical investigations at the IBR-2 reactor in Dubna // Neutron News. 2005. Vol. 16, No. 3. P. 24-27.

Дополнительную информацию по НАА можно найти на сайтах:

<http://nfdfn.jinr.ru/>

<http://reactor.engr.wisc.edu/NAAtext.htm>

http://www.missouri.edu/~glascock/naa_over.htm

<http://www.ne.ncsu.edu/NRP/naa.html>

<http://www.sciner.com/Neutron/naa.html>

Заключение

Автор благодарит профессора И.Л. Ходаковского, научного руководителя кафедры химии, геохимии и космохимии университета «Дубна», за внимательное прочтение рукописи.