

Ба 125511

МИНИСТЕРСТВО ВЫСШЕГО И СРЕДНЕГО СПЕЦИАЛЬНОГО  
ОБРАЗОВАНИЯ БССР  
БЕЛОРУССКИЙ ОРДЕНА ТРУДОВОГО КРАСНОГО ЗНАМЕНИ  
ГОСУДАРСТВЕННЫЙ УНИВЕРСИТЕТ им. В. И. ЛЕНИНА

Минский Государственный университет  
им. В. И. Ленина

ОПРЕДЕЛЕНИЕ МИКРОПРИМЕСЕЙ В ЧАСТЫХ ЦИРОГРАФИТЕ  
И ВЕТРИДЕ БОРА МЕТОДАМИ НЕЙТРОННОЙ АКТИВАЦИИ

А в т о р е ф е р а т

диссертации на соискание ученой степени  
кандидата физико-математических наук

( 01.04.16 - физика атомного ядра и  
космических лучей )

Бел. 2005

Минск - 1978 г.

Ба 125 511

МИНИСТЕРСТВО ВЫСШЕГО И СРЕДНЕГО СПЕЦИАЛЬНОГО  
ОБРАЗОВАНИЯ БССР  
БЕЛОРУССКИЙ ОРДЕНА ТРУДОВОГО КРАСНОГО ЗНАМЕНИ  
ГОСУДАРСТВЕННЫЙ УНИВЕРСИТЕТ им. В. И. ЛЕНИНА

Мурзида Гараевна ВАЛИЕВА

ОПРЕДЕЛЕНИЕ МИКРОПРИМЕСЕЙ В ЧИСТЫХ ПИРОГРАФИТЕ  
И НИТРИДЕ БОРА МЕТОДАМИ НЕЙТРОННОЙ АКТИВАЦИИ

А в т о р е ф е р а т

диссертации на соискание ученой степени  
кандидата физико-математических наук

( 01.04.16 - физика атомного ядра и  
космических лучей )

Бел. 2005

Работа выполнена в лаборатории активационного анализа  
чистых и сверхчистых материалов Института ядерной физики  
АН УССР

Научный руководитель - член корреспондент АН БССР,  
доктор физико-математических наук,  
профессор Е.М.ЛОБАНОВ.

Официальные оппоненты:

1. Доктор физико-математических наук,  
профессор И.У.ЛЕМБИРТ  
(Ленинградский ордена Ленина физико-технический  
институт им. А.Ф.Иоффе АН СССР)

2. Кандидат физико-математических наук Э.А.РУДАК  
(Институт физики АН БССР)

Выдающее научно-исследовательское учреждение - Институт  
физики Академии наук Латвийской ССР

Автореферат составлен " " \_\_\_\_\_ 1978г

Защита диссертации состоится " " 1978г. в 10 часов  
на заседании Совета по присуждению ученых степеней по физико-  
математическим наукам (физика) Белорусского Государственного  
ордена Трудового Красного Знамени университета им.В.И.Ленина  
(г.Минск, Главный корпус, комн.206).

О диссертацией можно ознакомиться в библиотеке Белгос-  
университета им.В.И.Ленина).

Ваше мнение и замечания на автореферат просим присылать  
по адресу: г.Минск, 220080, Университетский городок, Белгос-  
университет.

Ученый секретарь Совета-

М.П.ХАЛИМАНОВИЧ

## ВВЕДЕНИЕ

Широкая область применения чистых материалов во многих отраслях науки и техники накладывает весьма жесткие требования на степень их чистоты. Содержание примесей в некоторых случаях должно быть доведено до  $10^{-10}\%$  и меньше.

Каждый из используемых методов анализа контроля чистоты материалов обладает своими преимуществами и недостатками. Все они, получая дальнейшее развитие, дополняют друг друга. Нейтронно-активационный анализ является одним из наиболее быстро совершенствующихся аналитических методов в наши дни. Преимуществом в его применении к контролю чистых материалов является возможность осуществления группового инструментального анализа, что весьма важно, так как ряд веществ чрезвычайно устойчив к воздействию химических реагентов. К таким веществам относятся, например, пирографит и нитрид бора, область применения которых широка и разнообразна.

Представленная работа имела целью разработать инструментальные нейтронно-активационные методики анализа примесей в этих материалах с учетом их специфических особенностей, с привлечением временной спектрометрии для идентификации радиоизотопов, с разработкой математических приемов учета конкурирующих реакций и расшифровки многокомпонентных кривых спада активности.

### 1. СПЕЦИФИКА НЕЙТРОННО-АКТИВАЦИОННОГО АНАЛИЗА ПИРОГРАФИТА И НИТРИДА БОРА. ЭФФЕКТ САМОЭКРАНИРОВАНИЯ НЕЙТРОНОВ В НИТРИДЕ БОРА

Кроме общих источников погрешностей, характерных для нейтронно-активационного анализа, необходимо учесть и сугубо специфичные источники, связанные с элементарным составом анализируемых матриц.

Известно, что графит термализует нейтронный поток. Для

Изучения необходимости учета термализации нейтронного потока в пирографите был проведен эксперимент, который показал, что этот эффект можно пренебречь.

В состав нитрида бора входит до 43,6% бора, а последний является сильным поглотителем тепловых нейтронов и вызывает эффект самоэкранирования, что служит причиной неравномерной активации примесей в образцах нитрида бора. Наличие самоэкранирования приводит к необходимости раздельного облучения образцов и эталонов, так как в эталонах из-за соседства с экранной матрицей наводится меньшая активность. При одновременном же облучении образцов и эталонов может возникнуть неточность в анализе, если поток нейтронов не остается постоянным. С целью выявления величины погрешности, вносимой из-за непостоянства потока, было приготовлено 50 одинаковых эталонов дитрия, которые затем последовательно облучались в течение семи часов в тепловом канале реактора ВВР-С ИЯФ АН УзССР. Как доказал эксперимент, наблюдается колебание нейтронного потока. Общий размах варьирования доходит до 30%, поэтому при раздельном облучении необходимо присутствие "свидетелей" потока.

Для изучения ослабления нейтронного потока в нитриде бора был проведен эксперимент, совершенно аналогичный изучению эффекта термализации в сферическом образце пирографита. Экспериментальная кривая изменения удельной активности по диаметру образца показывает, что основной градиент уменьшения потока приходится на слой шириной 2-3 мм, остальные слои образца действуют слабо.

Визуальным проявлением эффекта самоэкранирования является и "цветовой" эффект. При облучении образца нитрида бора наблюдается изменение цвета. С увеличением дозы нейтронов цвет меняется от розового до темно-коричневого. В сферическом образце нитрида бора интенсивность окрашивания спадает от периферии к центру, причем более резко в наружных слоях.

Наличие эффекта самоэкранирования можно установить и по зависимости удельной активности примеси от веса образца. С этой целью из порошкообразного нитрида бора, в который было внесено

и равномерно распределено известное количество скандия, были приготовлены и облучены сферические образцы разного диаметра со средней плотностью  $1,1 \text{ г/см}^3$ . После длительного "охлаждения" измерялась активность радионуклида  $Sc^{45}$  и строился график зависимости удельной активности от веса образца. Наблюдается экспоненциальный характер зависимости.

Эффект самоэкранирования в образцах нитрида бора является причиной возникновения систематической ошибки, вследствие чего процентное содержание примеси в пробах отклоняется от истинного содержания в сторону занижения. Для установления систематической ошибки использован метод регрессионного анализа. Графическая и математическая проверка этим методом показала, что в образцах нитрида бора из-за эффекта самоэкранирования полагается линейно изменяющаяся систематическая ошибка.

Для учета самоэкранирования экспериментально определялись поправочные коэффициенты методом добавок. В порошкообразный нитрид бора вводилось и равномерно распределялось известное небольшое количество определяемого элемента в виде раствора. Готовились контрольные образцы нитрида бора без примеси для учета активности основы и такие же образцы с внесенной примесью. Образцам придавалась форма сферы или цилиндра. Соблюдались идентичными размеры, плотность, вес образцов, режим облучения и условия измерения активностей образцов и эталонов.

Истинная активность внесенной примеси подсчитывается, исходя из удельной эталонной активности  $A_{\text{эт}}$  и известного количества "добавки"  $m_d$

$$A(\text{ист.}) = m_d \cdot A_{\text{эт}}^{ист.} \quad /1/$$

Частное от деления истинной активности на величину измеренной дает поправочный коэффициент  $K$

$$K = \frac{A(\text{ист.})}{A(\text{изм.})} \quad /2/$$

Эти коэффициенты относятся к вполне конкретным образцам определенной формы, размеров, плотности.

Методом добавок были определены поправочные коэффициенты самоэкранирования в нитриде бора для ряда элементов. Образец была придана форма цилиндра размерами:  $D=6$  мм,  $h=30$  мм и  $\rho=1,1$  г/см<sup>3</sup>. Облучение проводилось тепловыми нейтронами и нейтронами спектра деления. Данные сведены в таблицу I. Вычисленное на основании активностей изотопов в образце и эталоне содержание примесей умножается на свой соответствующий поправочный коэффициент. Относительная погрешность поправочных коэффициентов ~10%.

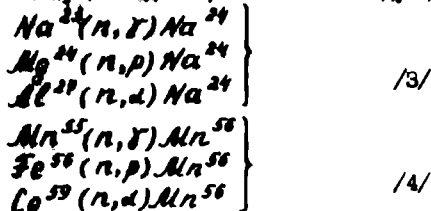
Кроме этого метода учета самопоглощения, мы прибегали также к облучению образцов в эталонах в борных и кадмиевых фильтрах. Метод фильтров особенно удобен для определения элементов, для которых борные и кадмиевые отношения малы.

## II. МЕТОД ЧЕРЕДУЮЩИХСЯ РЕЖИМОВ ОБЛУЧЕНИЯ ДЛЯ УЧЕТА ВКЛАДА КОНКУРИРУЮЩИХ РЕАКЦИЙ

При изучении возможных ошибок и погрешностей активационного анализа одно из первых мест отводится различного вида ядерным превращениям.

В процессе облучения нейтронами реактора наряду с реакциями радиационного захвата  $(n, \gamma)$  протекают и другие реакции, например,  $(n, \alpha)$ ,  $(n, p)$ ,  $(n, d)$ , реакции на осколках деления  $(n, f)$ . Все эти реакции могут привести к образованию аналитического радионуклида.

Анализируя образцы пирографита и нитрида бора, мы столкнулись с трудными конкурирующими реакциями на ядрах типа  $A^N$ ,  $A^{N+1}$ ,  $A^{N+2}$ . К числу этих реакций, часто встречающихся в матрицах различного происхождения, относятся следующие:



Таблица

коэффициенты самозакрепления для некоторых элементов, полученные  
облучением цилиндрических образцов внутри бора с плотностью)

$$\rho = 1,1 \text{ г/см}^3, \quad D = 6 \text{ мм}, \quad h = 30 \text{ мм}$$

Элемент	получение тепловых нейтронов										получение быстрых нейтронов													
	Na	Al	Ca	Mn	W	Na	As	Bz	Sb	W	Au	Na	Al	Ca	Mn	W	Na	As	Bz	Sb	W	Au		
$\bar{K}_{экс}$	13,9	11,0	8,8	10,9	9,1	12,8	1,9	2,8	3,6	4,1	3,7													
S	1,28	0,97	0,92	1,07	0,90	1,15	0,21	0,30	0,41	0,38	0,33													
V	9,2	9,7	10,5	9,8	9,9	9,0	11,2	10,8	11,5	9,3	9,0													
$\Delta \bar{I}$	1,085	0,898	0,852	0,991	0,833	1,058	0,193	0,276	0,377	0,350	0,304													

$\bar{K}_{экс}$  - среднее значение поправочного коэффициента

S - средняя квадратичная ошибка

V - коэффициент вариации

$\Delta \bar{I}$  - доверительный интервал /  $P=0,95$ ;  $f=30$



$$\left. \begin{aligned} \rho^{31}(n, \gamma) \rho^{32} \\ g^{32}(n, \rho) \rho^{32} \\ c^{32}(n, d) \rho^{32} \end{aligned} \right\} /5/$$

Для количественного расчленения суммарной активности, наведенной от трех ядер-конкурентов, нами использован экспериментальный метод чередующихся режимов облучения с последующей математической обработкой. В основу метода положено различие в нейтронном спектре в отдельных зонах реактора и применение сильно поглощающих телловыми нейтронами материалов.

При наличии возможности осуществления облучений, дающих не идентичное проределение каждой из составляющих, суммарную активность можно расчленить на компоненты путем решения следующих систем линейных уравнений:

$$A_j = \sum_{i=1}^3 d_{ij} A_i \quad j=1,2,3 \quad /6/$$

Индекс "j" соответствует режиму облучения, а i - компоненте.  $d_{ij}$  - обратные значения коэффициентов перехода от одного режима облучения к другому.

В условиях саморегулирования эта система имеет вид:

$$A_j = \sum d_{ij} f_{ij} A_i \quad j=1,2,3 \quad /7/$$

где коэффициенты " $f_{ij}$ " соответствуют обратному значению коэффициентов саморегулирования данной компоненты в заданном режиме облучения.

Расшифровка по этим системам требует строгого соблюдения подобия условий облучения в различных режимах, условий последующих измерений наведенных активностей, введения поправок на распад, применения свидетелей потока и т.д.

Если не за известное принимать непосредственно искомые количества аналитической компоненты  $M_i$ , а за опорные параметры - значения эталонной удельной наведенной активности каждой компоненты в данных условиях облучения -  $C_{ij}$ , то требования

строгой идентичности в облучениях и измерениях отпадают. В этом случае система примет вид:

$$A_j = \sum_{i=1}^3 C_{ij} m_i \quad j=1,2,3 \quad /8/$$

В условиях самоэкранирования:

$$A_j = \sum_{i=1}^3 C_{ij} \theta_{ij} m_i \quad j=1,2,3 \quad /9/$$

Если возможность определения одной из компонент по параллельной реакции есть, то расчеты упрощаются. Пусть К-компонента определяется путем сравнения активности эталона и образца:

$$m_K = \frac{m_{ЭТ} A_K}{A_{ЭТ}} = \frac{A_K}{C_K} \quad /10/$$

$$\frac{A_{ЭТ}}{m_{ЭТ}} = C_K \quad - \text{удельная эталонная активность К-изотопа.}$$

Тогда вместо системы /8/ имеем систему из двух уравнений:

$$A_j = \sum_{i=1}^2 C_{ij} m_i + \frac{A_K}{C_K} C_{3j} \quad /11/$$

или:

$$A_j' = \sum_{i=1}^2 C_{ij} m_i \quad j=1,2 \quad /12/$$

где:

$$A_j' = A_j - \frac{A_K}{C_K} C_{3j} \quad /13/$$

причем,  $C_{3j}$  находится облучением эталонов третьей компоненты в обоих режимах  $j$ .

Для матриц, вызывающих эффект самоэкранирования, система /11/ имеет вид:

$$A_j = \sum_{i=1}^2 b_{ij} m_i + \frac{A_K}{C_K} b_{3j} \quad /14/$$

где

$$\left. \begin{aligned} b_{ij} &= p_{ij} c_{ij} \\ b_{ji} &= p_{ji} c_{ji} \end{aligned} \right\} /15/$$

$b_{ij}$  - обратные значения коэффициентов самоэкранирования в обоих режимах  $j$ .

В анализируемых матрицах каждая из троек элементов может присутствовать в самых различных количественных соотношениях ее компонент. Поэтому необходимо установить, при каких количественных соотношениях составляющих необходим учет их вкладов и когда ими можно пренебречь. Эти данные были проверены для двух троек, приводящих к образованию радиоизотопов  $Mg^{24}$  и  $P^{32}$ . Были приготовлены и проверены на чистоту от соседних примесей химикатов эталоны этих элементов и облучены в трех режимах - в зоне реактора, в условиях фильтрации кадмием или бором, в тепловой колонне. Режим облучения и геометрия измерения поддерживались одинаковыми. Одновременно были измерены и сравнены кадмиевые и борные отношения ряда элементов. Результаты приведены в таблице 2.

Как видно из таблицы 2, борная фильтрация в ряде случаев оказывает более существенное подавляющее действие, чем кадмиевая. Это обстоятельство может быть использовано для улучшения селективности нейтронно-активационного определения некоторых элементов, когда фон мешающих радиоизотопов может быть значительно понижен борной фильтрацией.

В разных режимах облучения были установлены концентрационные соотношения ядер-конкурентов для получения одинаковой активности. Если принять активность, наведенную по реакции  $n, \gamma$ , за основную, а вклад от активностей, наведенных по конкурирующим реакциям, равным 10%, то концентрационные соотношения, при которых необходим учет конкурирующих вкладов, получаются следующими /таблица 3/.

Рассмотренные приемы расфировки трехкомпонентной активности были использованы при определении натрия, магния и алюминия в пирографите и нитриде бора.

Таблица 2

Кадмиевые и борные отношения некоторых элементов, измеренные в экспериментальных каналах реактора ВВР-С ИЯФ АН УзССР

Элемент	Радио-изотоп	$R(Cd)$	$R(B)$	Б канала	$R(B)/R(Cd)$
Натрий	$Na^{24}$	40	84	6	2,1
Натрий	$Na^{24}$	41	66	8	1,6
Фосфор	$P^{32}$	37,5	50,4	6	1,3
Хлор	$Cl^{38}$	20,7	36,5	6	1,8
Скандий	$Sc^{46}$	60	116	8	1,9
Марганец	$Mn^{56}$	16,5	33	6	2,0
Железо	$Fe^{59}$	33	51	8	1,5
Медь	$Cu^{64}$	14,8	22,4	6	1,5
Цинк	$Zn^{69m}$	8,1	7,5	6	0,9
Галлий	$Ga^{72}$	5,2	5,1	6	~1,0
Индий	$As^{76}$	1,6	1,6	6	1,0
Бром	$Br^{82}$	2,9	3,0	8	~1,0
Молибден	$Mo^{99}$	1,5	1,4	6	0,9
Молибден	$Mo^{99}$	1,7	1,6	8	0,9
Кадмий	$Cd^{115}$	2,6	1,4	8	0,5
Олово	$Sn^{117m}$	1,4	1,2	8	0,9
Сурьма	$Sb^{122}$	2,0	3,2	8	1,6
Лантан	$La^{140}$	21	31	8	1,5
Вольфрам	$W^{187}$	4,7	4,5	8	~1,0
Золото	$Au^{198}$	3,9	4,2	8	~1,1

Таблица 3

Граничные концентрационные соотношения при десятипроцентном вкладе конкурирующей активности

Режим облучения	В основные соотношения			
	$Na : Mg : Al$		$P : S : Cl$	
Зона	I : 196 : 370		I : 0,83 : 2,7	
$Cd$ -фильтр	I	6,1 10,0	I	0,026: 0,08
$B$ -фильтр	I	3,0 5,0	I	0,02 0,06
Тепловая колонна	I	950 2100	I	3,53 7,5

### III. АКТИВАЦИОННЫЙ АНАЛИЗ ПРИМЕСЕЙ В ПИРОГРАФИТЕ МЕТОДОМ МКСЕК-НСЕК ЗАДЕРЖКИ СОВПАДАЮЩИХ ИЗ- ЛУЧЕНИЙ

Аппаратура для нейтронно-активационного определения примесей в пирографите и нитриде бора - это сцинтилляционный  $\gamma$ -спектрометр, в детекторе которого используется кристалл  $NaJ(Tl)$  размерами 40x50 мм и фотомножитель ФЭУ-13.

При анализе примесей в пирографите применялась также аппаратура по задержанным совпадениям, основанная на использовании, кроме характеристических  $\beta$  - или  $\gamma$ -излучений радиоизотопов, еще и определенных значений времен жизни возбужденных уровней ядер. Известно, что возникшие возбужденные уровни ядер распадаются по экспоненциальному закону. В данной работе используется обратная связь, т.е. по известной экспоненте уровня определяется ядро.

Анализирующая аппаратура задержанных совпадений состоит из двух частей:

- 1/ системы детектирования,
- 2/ системы анализа.

Для регистрации  $\beta$ -лучей применялись пластические сцинтилляторы размерами  $\phi$  30x1+2 мм, для  $\gamma$ -лучей - кристаллы стиббен  $\phi$  30x15+30 мм и  $NaJ(Tl)\phi$  30+40x15+40 мм. В спектрометрическом  $\gamma$ -детекторе постоянно использовался кристалл  $NaJ(Tl)\phi$  40x50 мм. Вместо ФЭУ-13 в этой аппаратуре применены ФЭУ-36, так как они обладают хорошими временными характеристиками и большим коэффициентом усиления.

Система анализа разработана в двух вариантах:

- 1/ микросекундная анализирующая система,
- 2/ наносекундная анализирующая система.

Разрешающее время микросекундной аппаратуры  $2\tau = 1,0$  мсек, наносекундной -  $2\tau = 1,2$  нсек.

В отличие от схем совпадений в этой аппаратуре отбор производится по трем параметрам:

- 1/ отбор по энергиям совпадающих  $\beta$  - или  $\gamma$ -излучений,
- 2/ отбор регистрируемых многоканальным анализатором  $\gamma$ -лучей,

3/ отбор задержанных по времени совпадающих излучений.

Возможность тройного отбора достаточно полно характеризует анализируемый радиоизотоп, поэтому часто отпадает необходимость определять четвертый параметр - период полураспада радиоизотопа, что сокращает время анализа. Чувствительность определения примесей этой аппаратурой в десять и более раз выше, чем в обычных схемах совпадений.

Конечным анализируемым спектром в методе мксек-нсек - задержки совпадающих излучений, так же как и в классической  $\beta$ -спектрометрии, является характеристический  $\beta$ -спектр изотопа. Но обычная  $\beta$ -спектрометрия дает спектр всех  $\beta$ -лучей, излучаемых при распаде радиоизотопа, а в этой аппаратуре анализируется лишь спектр тех  $\beta$ -лучей, которые испускаются в результате распада изомерного уровня ядра.

В работе приводится перечень элементов, которые можно анализировать с высокой чувствительностью новой аппаратурой. Путем использования этой аппаратуры в пирографите определены примеси лантана, неодима, тантала, арбиа, вольфрама. Ошибка определения находится в пределах  $\pm 25\%$ .

Наличие уровня 2083 кэВ у  $\text{Ce}^{140}$ /распад  $L\alpha$   $\text{Ce}^{140}$  / с  $T_{1/2} = 3,4 \cdot 10^{-9}$  сек позволяет применить наносекундный вариант установки при анализах примеси лантана. Образец вместе с эталоном лантана облучался в течение 10 часов потоком нейтронов  $1,8 \cdot 10^{13}$  н/см<sup>2</sup>.сек. Для измерений использованы совпадения  $\beta$ -лучей /1380 кэВ + 1710 кэВ/ с  $\beta$ -лучами /486 кэВ + 1597 кэВ/. Продолжительность набора фотопика для образца 2 часа, для эталона - 10 минут.

При анализах примесей неодима и тантала использованы совпадения  $\beta$  /820 кэВ/-лучей с  $\beta$  /91 кэВ/-лучами в случае неодима и  $\beta$  /447 кэВ/-лучей с  $\beta$  /100 кэВ/-лучами - в случае тантала /распады:  $\text{Nd}^{147}$  и  $\text{Ta}^{182}$  -  $\text{W}^{182}$ /. Образец пирографита совместно с эталонами неодима и тантала облучался в течение 10 часов. Измерения проводились после длительного охлаждения. Так как обе примеси присутствуют одновременно, то настройка наносекундной аппаратуры производилась сразу на обе примеси.

Продолжительность набора фотопика для образца равнялась 3 часам, а для эталонов неодима и тантала - 20 минутам. Определение неодима велось путем сравнения рентгеновского пика 45 кэв с аналогичным пиком в эталоне неодима, а определение тантала проводилось по рентгеновскому пику 68 кэв.

Преимущество уровня 425 кэв у  $Tm^{171}$ /распад:  $F_{\gamma}^{171} - Tm^{171}$  с  $T_{1/2} = 2,6 \cdot 10^{-6}$  сек создает возможность применения микросекундного варианта установки при анализе примесей эрбия в пирографите. Образец с эталоном эрбия облучался в течение 10 часов и "охлаждался" 5 часов. Для измерений использовались совпадения  $\beta$ /1065 кэв/-лучей с  $\gamma$ /308 кэв, 117 кэв/-лучами. Обработка результатов проводилась по  $\gamma$ -пику 308 кэв. Время набора фотопика для образца равнялось двум часам, а для эталона - 5 минутам.

Для анализа вольфрама использованы совпадения  $\gamma$ /479 кэв/-лучей с  $\gamma$ /134 кэв, 72 кэв/-лучами /распад:  $W^{187} - Re^{187}$ . Применение метода обусловлено наличием уровня 206 кэв  $Re^{187}$  с  $T_{1/2} = 5,3 \cdot 10^{-7}$  сек.

#### IV. РАСШИФРОВКА ДВУХ- И ТРЕХКОМПОНЕНТНЫХ КРИВЫХ СПАДА АКТИВНОСТИ. ОПРЕДЕЛЕНИЕ ПРИМЕСЕЙ В ПИРОГРАФИТЕ И НИТРИДЕ БОРА СЦИНТИЛЛЯЦИОННОЙ $\gamma$ -СПЕКТРОМЕТРИЕЙ

Среди физических методов исследования излучений радиоактивных изотопов наиболее широкое применение находит сцинтилляционная гамма-спектрометрия. Идентификация анализируемого радиоизотопа производится по периоду полураспада, энергии гамма-излучения, интенсивности гамма-излучения.

Аналитические фотопики очень часто не являются одиночными, а принадлежат одновременно двум, трем и более изотопам. В работе рассматриваются возможности разложения неразрешенных двух- и трехкомпонентных кривых спада активности, основываясь на различия периодов полураспада составляющих и на решении системы уравнений.

Двухкомпонентная кривая спада активности в двух точках измерения  $t = 0$  и  $t$  может быть описана следующей системой:

$$\left. \begin{aligned} \mathcal{A}_I &= \mathcal{A}_1 + \mathcal{A}_2 \\ \mathcal{A}_{II} &= \mathcal{A}_1 \alpha + \mathcal{A}_2 \beta \end{aligned} \right\} \quad /16/$$

где  $\mathcal{A}_1$  и  $\mathcal{A}_2$  - компоненты,

$$\left. \begin{aligned} \alpha &= \exp(-\lambda_1 t) \\ \beta &= \exp(-\lambda_2 t) \end{aligned} \right\} \quad /17/$$

Решения /16/ относительно компонент  $\mathcal{A}_1$  и  $\mathcal{A}_2$  имеют вид:

$$\mathcal{A}_1 = \frac{\mathcal{A}_I \beta - \mathcal{A}_{II}}{\beta - \alpha} \quad /18/$$

$$\mathcal{A}_2 = \frac{\mathcal{A}_I \alpha - \mathcal{A}_{II}}{\alpha - \beta} \quad /19/$$

Для трехкомпонентного фотопика в трех точках измерения  $t_1 = 0$ ,  $t_2$ ,  $t_3$  аналогично можно записать:

$$\left. \begin{aligned} \mathcal{A}_I &= \mathcal{A}_{01} + \mathcal{A}_{02} + \mathcal{A}_{03} \\ \mathcal{A}_{II} &= \mathcal{A}_{01} e^{-\lambda_1 t_2} + \mathcal{A}_{02} e^{-\lambda_2 t_2} + \mathcal{A}_{03} e^{-\lambda_3 t_2} \\ \mathcal{A}_{III} &= \mathcal{A}_{01} e^{-\lambda_1 t_3} + \mathcal{A}_{02} e^{-\lambda_2 t_3} + \mathcal{A}_{03} e^{-\lambda_3 t_3} \end{aligned} \right\} \quad /20/$$

Решения этой системы уравнений относительно компонент  $\mathcal{A}_{01}$ ,  $\mathcal{A}_{02}$ ,  $\mathcal{A}_{03}$  могут быть найдены путем использования выражений для основного и присоединенного определителей.

Описанные приемы расшифровки были использованы при обработке суммарного фотопика 0,84 Мэв облученного образца пирографита, принадлежащего одновременно трем изотопам:  $Mg^{27}$ ,  $Mn^{56}$  и  $La^{140}$ .

Нейтронно-активационным анализом были определены примеси  $Ni$ ,  $Mg$ ,  $Al$ ,  $Sc$ ,  $V$ ,  $Mn$ ,  $Sb$ ,  $La$ ,  $Dy$ ,  $Bi$  в пирографите и  $Na$ ,  $Mg$ ,  $Al$ ,  $Ca$ ,  $Mn$ ,  $V$ ,  $Ru$ ,  $Sb$ ,  $W$  и  $Li$  в нитриде бора.

Облучение образцов и соответствующих эталонов проводилось в каналах реактора ВВР-М ИЯФ АН УзССР потоками нейтронов спектра деления  $1,8 \cdot 10^{13} \text{ н/см}^2 \cdot \text{сек}$  и потоком тепловых нейтронов  $1,2 \cdot 10^{12} \text{ н/см}^2 \cdot \text{сек}$ .



Таблица 4

Количественное содержание примесей в некоторых образцах  
пирографита и нитрида бора

Элемент	Матрица	Содержание / $\mu\text{m} / \%$
Натрий	Пирографит	$4,0 \pm 0,50 / \cdot 10^{-6}$
Натрий	Нитрид бора	$6,0 \pm 0,88 / \cdot 10^{-6}$
Магний	Пирографит	$5,4 \pm 0,74 / \cdot 10^{-3}$
Магний	Нитрид бора	$4,5 \pm 0,71 / \cdot 10^{-2}$
Алюминий	Пирографит	$6,0 \pm 0,63 / \cdot 10^{-5}$
Алюминий	Нитрид бора	$1,1 \pm 0,16 / \cdot 10^{-2}$
Кальций	Нитрид бора	$2,4 \pm 0,43 / \cdot 10^{-2}$
Скандий	Пирографит	$3,7 \pm 0,39 / \cdot 10^{-6}$
Ванадий	Пирографит	$0,9 \pm 0,08 / \cdot 10^{-5}$
Марганец	Пирографит	$1,9 \pm 0,19 / \cdot 10^{-6}$
Марганец	Нитрид бора	$1,0 \pm 0,17 / \cdot 10^{-4}$
Бром	Нитрид бора	$3,3 \pm 0,52 / \cdot 10^{-4}$
Рутений	Нитрид бора	$6,0 \pm 1,01 / \cdot 10^{-5}$
Сурьма	Пирографит	$4,0 \pm 0,46 / \cdot 10^{-6}$
Сурьма	Нитрид бора	$1,3 \pm 0,19 / \cdot 10^{-4}$
Лантан	Пирографит	$1,7 \pm 0,16 / \cdot 10^{-5}$
Лантан	Пирографит	$\approx 2,0 \pm 0,37 / \cdot 10^{-5}$
Неодим	Пирографит	$\approx 5,0 \pm 1,06 / \cdot 10^{-5}$
Диспровий	Пирографит	$1,0 \pm 0,08 / \cdot 10^{-6}$
Эрбий	Пирографит	$\approx < 1 \cdot 10^{-8}$
Тантал	Пирографит	$\approx 7,0 \pm 2,18 / \cdot 10^{-6}$
Вольфрам	Пирографит	$\approx 2,6 \pm 0,71 / \cdot 10^{-6}$
Вольфрам	Нитрид бора	$3,0 \pm 0,48 / \cdot 10^{-4}$
Золото	Пирографит	$3,7 \pm 0,35 / \cdot 10^{-7}$
Золото	Нитрид бора	$1,5 \pm 0,21 / \cdot 10^{-5}$

≈ - примеси определены методом задержанных совпадений

Методики для одинаковых примесей в пирографите и нитриде бора одни и те же, с той лишь разницей, что в случае нитрида бора производится раздельное облучение образцов и эталонов и вводится поправка на самоэкранирование. Некоторые результаты анализа образцов пирографита и нитрида бора приведены в таблице 4.

Ошибка определений для нитрида бора больше, а чувствительность хуже, чем для пирографита, причиной чего является самоэкранирование нитрида бора.

### ВЫВОДЫ

1. Впервые применен метод задержанных  $\beta - \gamma$  и гамма-гамма-совпадений для идентификация ядер в нейтронно-активационном анализе.

2. Разработаны новые методики активационного анализа примесей лантана, неодима, тантала, эрбия и вольфрама в пирографите с помощью аппаратуры нсек-миксек задержки совпадающих  $\beta - \gamma$ , гамма-гамма-излучений.

3. Составлена таблица элементов, определяемых с высокой чувствительностью методом нсек-миксек задержки совпадающих  $\beta - \gamma$ , гамма-гамма-излучений.

4. Исследованы возможные варианты расшифровки трехкомпонентных активностей, наведенных по конкурирующим реакциям  $n, \gamma / n, p / n, \alpha /$  на ядрах типа  $A^n, A^{n+1}, A^{n+4}$ , методом чередующихся режимов облучения.

5. Подробно исследован эффект самоэкранирования тепловых нейтронов реактора нитридом бора и предложены экспериментальные поправочные коэффициенты для учета этого эффекта.

6. Изучен эффект термализации нейтронного потока в пирографите.

7. Изучены колебания нейтронного потока в экспериментальном канале реактора. Оценены возможные погрешности анализа без свидетелей потока при раздельной активации образцов и эталонов.

8. Показаны преимущества борной фильтрации нейтронного потока перед кадмивой и измерены кадмиевые и борные отношения

для ряда элементов в экспериментальных каналах реактора ВВР-С ИЯФ АН УзССР.

9. Даны наиболее удобные для обсчета варианты расшифровки двух- и трехкомпонентных кривых спада активности.

10. Разработаны конкретные методики активационного определения примесей  $Na$ ,  $Mg$ ,  $Al$ ,  $Sc$ ,  $V$ ,  $Mn$ ,  $Sb$ ,  $La$ ,  $Lu$ ,  $Am$  в пирографите и  $Al$ ,  $Ca$ ,  $Mg$ ,  $Mn$ ,  $Na$ ,  $Br$ ,  $Ru$ ,  $Am$ ,  $Sb$ ,  $W$  в нитриде бора методом симуляционной гамма-спектрометрии

Основные материалы диссертации изложены в следующих работах:

1. Е.М.Лобанов, М.Г.Валиева, М.М.Усманова, Л.В.Красивина. Определение примесей в нитриде бора нейтронно-активационным анализом. В сб. "Активационный анализ чистых материалов", "Фан", Ташкент, 1968.
2. Е.М.Лобанов, М.Г.Валиева, М.М.Усманова. Нейтронно-активационное определение примесей в особо чистых нитриде бора и нитриде алюминия. Тезисы докладов Второго Всесоюзного совещания по активационному анализу. Ташкент, 1968.
3. Н.А.Крыленкова, М.Г.Валиева, А.А.Кист, М.М.Усманова, Е.М.Лобанов. Некоторые приемы упрощенной интерпретации двухкомпонентных фотопиков. Известия АН УзССР, №5, 1969.
4. Е.М.Лобанов, М.Г.Валиева, М.М.Усманова. Нейтронно-активационное определение натрия, золота, сурьмы и брома в нитриде бора. В сб. "Нейтронно-активационный анализ", "Фан", Ташкент, 1971.
5. Е.М.Лобанов, М.Г.Валиева, М.М.Усманова. Определение примесей в пирографите методом нейтронной активации. В сб. "Нейтронно-активационный анализ", "Фан", Ташкент, 1971.
6. М.Г.Валиева, Е.М.Лобанов, М.М.Усманова. Инструментальное определение золота и сурьмы в чистом пирографите. В сб. "Активационный анализ", "Фан", Ташкент, 1971.
7. Н.А.Крыленкова, М.Г.Валиева, А.А.Кист. Использование адекватных режимов облучения в элементном анализе по конкурирующим реакциям. ВИНТИ, №2192-70 депонирован., 1971.

8. Е.М.Лобанов, М.Г.Валиева, Х.М.Садеков, М.М.Усманова.  
Определение примесей в пирографите методом задержанных  
совпадений  $\beta$  - и  $\gamma$  -излучений. "Атомная энергия", том 31,  
вып. 3, сентябрь, 1971.
9. Н.А.Крыженкова, М.Г.Валиева, Е.М.Лобанов, М.М.Усманова.  
Применение метода чередующихся режимов облучения для  
нейтронно-активационного определения алюминия, магния и  
натрия в пирографите. "Атомная энергия", том 31, № 6, 1971.  
Депонир. №551/6359.

Материалы работы докладывались:

1. На конференции молодых ученых ИИФ АН УзССР, 1967 г.
2. На Втором Всесоюзном совещании по активационному анализу  
/апрель, 1968 г., г.Ташкент/.
3. На I Всесоюзном совещании по кристаллическому бору  
/апрель, 1969 г., г.Тбилиси/.

**Бел. 2005**

