АКТИВАЦИОННЫЙ АНАЛИЗ НА РЕЗОНАНСНЫХ НЕЙТРОНАХ С ИСПОЛЬЗОВАНИЕМ СПЕКТРОМЕТРА ПО ДЛИНЕ ЗАМЕДЛЕНИЯ

В.И.Гутько*, С.В.Кобяшева*, Т.Н.Корбут**, Д.В.Русакевич*, А.М.Хильманович**

*МГЭУ имени А.Д. Сахарова, г. Минск
** ИФ НАН РБ, г. Минск

В работе доказана необходимость контроля элементного состава почвы. Приведен вариант нейтронно-активационного анализа (НАА) на резонансных нейтронах. Формирование необходимых нейтронных спектров осуществляется с помощью спектрометра по длине замедления. Приведены физические основы работы спектрометра по длине замедления. Показана возможность проведения элементного анализа почв методом нейтронно-активационного анализа на резонансных нейтронах.

Введение

Химические элементы, в том числе и радионуклиды, в биосфере существуют в двух формах: концентрированной и рассеянной. Человек в результате своей деятельности активно использует многие химические элементы, в том числе и радионуклиды. В результате таких видов деятельности, как:

- производство и применение минеральных удобрений;
- утилизация и захоронение:
  - отходов промышленного производства;
  - радиоактивных отходов атомной промышленности, медицины и энергетики;
- испытание ядерного оружия;
- аварии на АЭС;

происходит переход радионуклидов из концентрированной формы в рассеянную, что в конечном итоге приводит к повышению естественного радиационного фона и увеличению дозовых нагрузок на человека.

Воздействие ионизирующего излучения на организм человека можно условно подразделить на внешнее, контактное и внутреннее. Внутреннее облучение — ингаляционное и пероральное. Опасность внутреннего облучения организма значительно выше, чем при внешнем облучении вследствие увеличения времени облучения (облучение происходит круглосуточно), уменьшения геометрического ослабления потока энергии (источник излучения расположен вплотную), невозможности применения защитных средств (в случае перорального), избирательного отложения радионуклидов в отдельных органах человека.

Основным поставщиком радионуклидов при пероральном поступлении являются сельскохозяйственные продукты: мясо, овощи и фрукты. Накопление ими радионуклидов сильно зависит от элементного состава почвы. Избыток (недостаток) тех или иных элементов в почве увеличивает коэффициенты перехода р/нуклидов из почвы в растения, что и приводит к резкому увеличению дозовых нагрузок. Кроме того, нарушение баланса микроэлементов в организме человека (не сбалансированное питание, по той же причине) способствует накоплению радионуклидов. Ярким примером этого является накопление йода-131 в щитовидной железе населения Беларуси после аварии на ЧАЭС. Таким образом, знание элементного состава почвы и возможность его коррекции позволяют снизить поступление радионуклидов в организм человека.

Как было указано в работах [1, 2], внедрение ядерно-физических методов на несколько порядков повысило минимально обнаруживаемые в почвах количества элементов. Одним из таких методов является нейтронно-активационный анализ (НАА), который возник и развился после открытия атомной энергии и создания атомных реакторов. НАА

характеризуется как метод, обладающий высокой чувствительностью. Инструментальный НАА характеризуется минимальной пробоподготовкой. Все эти достоинства НАА, а также экспрессность проведения привели к широкому использованию данного метода во многих отраслях науки и народного хозяйства. НАА также обладает рядом недостатков, к которым следует отнести необходимость применения сложной и дорогой аппаратуры; кроме того, должна быть обеспечена защита исполнителей анализа от радиоактивных излучений.

Из всего изложенного следует, что НАА, если рассматривать его в совокупности всех методов, обладает универсальными возможностями в том смысле, что он позволяет определить практически все имеющееся в природе элементы. Достигаемая чувствительность очень высока, нет ограничений диапазона определяемых концентраций, который может простираться от предела обнаружения до 100%.

Физические основы метода

В работе исследуется вариант нейтронно-активационного анализа на резонансных нейтронах, спектры которых формируются с помощью спектрометра по длине замедления нейтронов. Физические основы спектрометра по длине замедления нейтронов изложены в работах [3, 4].

Предлагаемый вариант НАА на резонансных нейтронах направлен на повышение избирательности анализа. Это достигается путем формирования линейно независимых спектров в резонансной области энергии нейтронов (0,68 эВ…50 кэВ), наиболее адекватно соответствующих основным резонансам в сечении реакции (n, γ) аналитических изотопов. В качестве аналитических выбраны реакции на изотопах элементов, образующих валовый состав почвы. Кроме этих элементов, рассматриваются микроэлементы, входящие в состав почвы. В таблице приведены элементы, аналитические изотопы, сечения реакции (n, γ) на тепловых нейтронах и резонансные интегралы.

Таблица. Элементы, входящие в валовый состав почвы, и их характеристики

Элемент	Аналит. изотоп	σ_{th}, барн	σ_{res}, барн	Элемент	Аналит. изотоп	σ_{th}, барн	σ_{res}, барн
$_{11}$Na	^{23}Na	0,53	0,32	$_{32}$As	^{75}As	4,48	61
$_{12}$Mg	^{26}Mg	0,035	0,027	$_{38}$Sr	^{84}Sr	0,95	11,2
$_{13}$Al	2^{7}Al	0,232	0,0175		^{86}Sr	1,04	5,17
$_{14}$Si	^{30}Si	0,107	0,66		^{88}Sr	0,058	0,06
$_{15}$P	^{31}P	0,172	0,085	$_{42}$Mo	^{92}Mo	0,019	0,81
$_{16}$S	^{34}S	0,24	0,534		^{98}Mo	0,13	7,3
$_{19}$K	^{41}K	1,46	1,4		^{100}Mo	0,199	4,2
$_{20}$Ca	^{44}Ca	0,88	0,56	$_{47}$Ag	^{107}Ag	37,6	95
$_{22}$Ti	^{50}Ti	0,179	0,12		^{109}Ag	91	1450
$_{23}$V	^{51}V	4,93	2,6	$_{48}$Cd	^{106}Cd	1	4
$_{24}$Cr	^{50}Cr	15,9	8,1		^{108}Cd	1,1	11
$_{25}$Mn	^{55}Mn	13,3	13,8		^{110}Cd	11	40,5
$_{26}$Fe	^{58}Fe	1,28	1,4		^{112}Cd	2,2	13,5
$_{27}$Co	^{59}Co	37,45	71,1		^{114}Cd	0,336	23
$_{28}$Ni	^{64}Ni	1,58	1,19		^{116}Cd	0,075	1,35
$_{29}$Cu	^{63}Cu	4,5	4,94	$_{50}$Sn	^{112}Sn	1,01	35
	^{65}Cu	2,17	2,32		^{116}Sn	0,14	13,7
$_{30}$Zn	^{64}Zn	0,76	1,4		^{118}Sn	0,22	6,3
	^{68}Zn	0,072	0,24		^{124}Sn	9,134	8,532
	^{70}Zn	0,092	0,86	$_{82}$Pb	^{206}Pb	0,0305	0,2

Из таблицы следует, что для реакций на изотопах некоторых элементов сечение σ_{res},

$>\sigma_{th}$. Например, для изотопов ^{30}Si, ^{34}S, ^{55}Mn, ^{58}Fe, ^{59}Co, ^{63}Cu, ^{65}Cu, ^{64}Zn, ^{68}Zn, ^{70}Zn, ^{75}As, ^{84}Sr, ^{86}Sr, ^{92}Mo, ^{98}Mo, ^{109}Ag, ^{106}Cd, ^{108}Cd, ^{110}Cd, ^{112}Cd, ^{114}Cd, ^{116}Cd, ^{112}Sn, ^{118}Sn, ^{206}Pb сечение радиационного захвата резонансных нейтронов превосходит сечение захвата тепловых нейтронов. Этим обстоятельством можно воспользоваться для повышения избирательности анализа.

В нашей работе [5] экспериментально показано, что с увеличением расстояния между источником нейтронов и точкой, в которой находится в замедлителе исследуемый образец, спектр резонансных нейтронов, описываемый выражением $\varphi(E)=A/E^{1+\alpha}$, «ужесточается». Степень «ужесточения» можно увеличить с помощью устройства, названного нами «спектрометром по длине замедления нейтронов» [3, 4]. Особенностью этого устройства является выбор ширины замедлителя и плотности материала замедлителя в соответствии с длиной пробега нейтрона в этом материале.

Рассматриваются в качестве материала замедлителя вода, полиэтилен, графит, свинец. В работе методом Монте-Карло проведены численные расчеты скоростей реакций для нейтронов с начальной энергией 2,5 МэВ для перечисленных в таблице аналитических изотопов и названных выше замедлителей. Проведен анализ полученных результатов и сформулированы требования к размещению исследуемых образцов веществ.

Оптимизация времени измерения активности радионуклидов исследуемых образцов

Существенным моментом в реализации рассматриваемого метода является оптимизация времени измерения активности исследуемых образцов. Задача оптимизации времени измерения активности образцов вызвана наличием их большого количества, существованием нескольких используемых реакций, а также требованием проведения измерений в одинаковых условиях, т. е. использования одного гамма-спектрометра.

В связи с этим в работе проводится расчет относительной статистической погрешности числа отсчетов аналитических пиков, в котором учитывается найденный выше спектр резонансных нейтронов и сечение ядерной реакции в резонансной области для рассматриваемых условий эксперимента.

В качестве критерия оптимального времени измерения может быть выбрано требованияе равенства относительной статической погрешности числа отсчетов всех аналитических пиков.

Относительная статическая погрешность числа отсчетов k-го аналитического пика δS_k рассчитывается как [6]

$$\delta S_k = \frac{\Delta S_k}{S_k} = \frac{\sqrt{S_{tot,k} + S_{bkg,k}}}{S_k}, \tag{1}$$

где $S_{tot,k}$ – суммарное число отсчетов в области номеров каналов анализатора, соответствующих k-му пика ($n=n_s \ldots n_f$)

$$S_{tot,k} = S_k + S_{bkg,k}, \tag{2}$$

а $S_{bkg,k}$ – число отсчетов фона, состоящее из истинного фона установки $S^*_{bkg,k}$ и фона, обусловленного другими γ-излучателями используемого вещества $S^{**}_{bkg,k}$

$$S_{bkg,k} = S^*_{bkg,k} + S^{**}_{bkg,k} = \sum_{n=n_s}^{n_f} \left(S^*_{bkg,k,n} + S^{**}_{bkg,k,n} \right). \tag{3}$$

Истинный фон γ-спектрометра $S^*_{bkg,k}$ может быть измерен экспериментально, при наличии в момент измерения около детектора необлученного нейтронами раствора. Фон, обусловленный другими γ-излучателями планируемого к использованию вещества $S^{**}_{bkg,k}$ должен быть рассчитан. Для этого воспользуемся выражением числа отсчетов S_{bn}, вы-

званных элементом b в канале n спектрометра, которое для указанных целей запишем в виде

$$S_{bn} = m_b \sum_{i=1}^{I} \sum_{j=1}^{J} \sum_{m=1}^{M} \frac{N_A g_{bi} p_{bijm} I_{bij} \left[1 - \exp\left(-\lambda_j t_a\right)\right] \exp\left(-\lambda_j t_s\right) \left[1 - \exp\left(-\lambda_j t_m\right)\right]}{M_b \lambda_j} \cdot \xi \kappa_m \psi_{mn} . \qquad (4)$$

В приведенной формуле приняты следующие обозначения:
S – число отсчетов в фотопике;
m – масса эталонного элемента, г;
g – распространенность аналитического изотопа, отн. единицы;
p – выход γ-квантов на один распад образовавшегося радионуклида, отн. единицы;
N_A =6,022·10^{23} – число Авогадро;
M – атомная масса элемента, г·моль$^{-1}$;
λ – постоянная радиоактивного распада, с$^{-1}$;
t_a, t_s, t_m – времена активации нейтронами, выдержки и измерения, соответственно, с;
ξ и κ - коэффициенты, учитывающие самопоглощение нейтронов и γ-квантов образцом.
Функция ψ_{mn}, входящая в (4) и описывающая аппаратурную форму линии спектрометра [7], позволяет рассчитать эффективность регистрации γ-квантов с энергией E_m

$$\varepsilon_m = \sum_{n=n_{sm}}^{n_{fm}} \psi_{mn} . \qquad (5)$$

В выражении (5) n_{sm} и n_{fm} – начальный и конечный каналы спектра, соответствующие пику с энергией γ-кванта E_m.

На начальном этапе расчетов можно принять, что процедура сравнения реакций при определении содержания элементов является относительной. В этом случае положим, что масса элемента b равняется m_b=1 г, а плотность потока нейтронов, определяющего скорость реакции I_{bij}, для заданного спектра – F=10^7 нейтрон/см^{2}с. На следующим этапе расчетов можно принять содержание элементов в образцах равное значению кларков, а плотность потока нейтронов найденному экспериментальному значению..

Просуммировав числа отсчетов S_{bn} в каналах $n_s \ldots n_f$, найдем $S_{tot,k}$, $S^{**}_{bkg,k}$ и S_k. С помощью формул (1 – 3) рассчитаем относительную статистическую погрешность числа отсчетов δS_k.

Отметим, что с точки зрения методологии ядерно-физических экспериментов проведение предварительных расчетов относительной статистической погрешности является обязательным этапом наряду с самим экспериментом и оценкой реальной погрешности анализа.

Список литературы

1. В.И.Гутько, А.М.Хильманович. Методы нейтронно-активационного анализа // Экологический вестник, Минск, 2009, № 2(8), с. 34 – 43.
2. М.С.Веренчикова, В.И.Гутько, А.М.Хильманович. Определение валового содержания химических элементов в почве // Экологический вестник, Минск, 2010, № 2(12), с. 155 – 152.
3. Способ измерения сечений ядерных реакций и устройство для его осуществления: а.с. №1434982 от 1.07.1988 / В.И.Гутько, А.М.Хильманович; Ин-т физики АН БССР.
4. Измерение сечений ядерных реакций с помощью спектрометра по длине замедления / В.И.Гутько, А.М.Хильманович. –Минск, 1996. 14 с. – (Препринт / АН БССР, Институт физики; ИФ № 705).
5. Т.Н.Корбут, С.В.Корнеев, Б.АМарцынкевич, А.Ю.Фоков, А.М.Хильманович. Использование новых резонансных интегралов при определении характерисик спектрального распределения нейтронов // ПТЭ, 2009 № 3, с. 26 – 29.

6. В.И.Гольданский, А.В.Куценко, М.И.Подгорецкий. Статистика отсчетов при регистрации ядерных частиц. –М.: "Госатомиздат", 1959.– 411 с.
7. Марцынкевич Б.А., Тадэуш В.Н., Хильманович А.М., Ярмолкевич В.А. Расчет аппаратурной формы линии γ-спектрометра интерполяционным методом // Известия АН БССР. Сер. физ.-мат. наук. –1986. – № 4. – С. 68–71.