

УДК 543.52

ПРИМЕНЕНИЕ ЦИКЛИЧЕСКОГО МЕТОДА ПРИ АНАЛИЗЕ СОДЕРЖАНИЙ УРАНА И ЛИТИЯ С ИСПОЛЬЗОВАНИЕМ РЕГИСТРАЦИИ ЗАПАЗДЫВАЮЩИХ НЕЙТРОНОВ

И.Л. Галстян, А.Б. Леонтьев

Описано применение циклического метода для нейтронного активационного анализа содержаний урана по регистрации запаздывающих нейтронов, а также урана и лития по регистрации запаздывающих нейтронов с поправкой на содержание кислорода. Определены оптимальные режимы анализа, рассмотрены возможности и ограничения метода. Приведены результаты экспериментальных исследований некоторых образцов отложений васюганской свиты по керну одной из скважин Первомайского месторождения нефти при анализе содержания урана, а также искусственных порошковых образцов при исследовании содержания лития.

Ключевые слова: нейтронный активационный анализ, запаздывающие нейтроны, гамма-кванты, циклический метод, уран, литий.

Введение

Одной из важнейших задач подъема экономики нашей страны является улучшение энергообеспечения народного хозяйства, в чем немалая доля принадлежит атомной энергетике, атомному машиностроению. Уран и литий – элементы, необходимые для создания любой атомной электростанции. Литий, кроме того, используется в военной и космической отраслях промышленности, в цветной и черной металлургии; без него невозможно решение проблемы управляемого термоядерного цикла.

Одним из наиболее эффективных методов измерения содержания урана и лития является нейтронный активационный анализ с регистрацией *запаздывающих нейтронов* (ЗН).

В практике нейтронного активационного анализа *циклический метод* (ЦМ) используется исключительно для определения содержания короткоживущих радионуклидов в аналитических целях. Выявление содержаний урана и лития с измерением счета ЗН после активации исследуемых проб можно отнести к анали-

зу с использованием короткоживущих радионуклидов и в этих случаях применять ЦМ.

Применение ЦМ – многократного повторения цикла «облучение – измерение» – дает следующие преимущества:

- уменьшается статистическая погрешность вследствие существенного увеличения объема счетной или спектрометрической информации;
- снижаются случайные погрешности, связанные с невоспроизводимостью геометрии облучения и измерения, в результате смягчаются требования к точности фиксации контейнеров с пробами, а кроме того, упрощаются конструкции устройств облучения и измерения (при целевом применении ЦМ);
- снижаются погрешности, обусловленные кратковременными изменениями параметров аппаратуры.

К недостаткам ЦМ можно отнести:

- увеличение продолжительности измерений;
- повышение требований к ресурсу пневмо-

транспортных устройств и транспортных контейнеров, испытывающих большие нагрузки;

- ужесточение требований к физической и биологической защите, поскольку при применении ЦМ в инструментальном реакторном нейтронном активационном анализе из-за длительного суммарного времени облучения существенно увеличивается активность матричных элементов в исследуемых пробах.

Однако в большинстве случаев повышение чувствительности и точности определения малых концентраций анализируемых элементов является определяющим фактором для выбора ЦМ в качестве метода анализа.

Цель настоящей статьи заключается в оптимизации временного режима ЦМ применительно к определению содержаний урана и лития с использованием регистрации ЗН и проверке теоретических выводов на практике.

Теоретические расчеты и рекомендации по оптимизации временного режима ЦМ

Основные аспекты ЦМ достаточно подробно рассмотрены в работе N.Spyrou [1]. Далее представлены результаты оптимизации ЦМ применительно к традиционному методу регистрации запаздывающих нейтронов (МЗН) и методу регистрации запаздывающих нейтронов с поправкой на содержание кислорода (МЗНК).

Циклический метод на основе МЗН. В случае определения содержания урана с использованием МЗН формула для суммарного счета ЗН

N_c в результате q циклов облучения, выдержки и измерения приводится к виду

$$N_c = \frac{N_A}{A} m \theta f \sigma_f \varepsilon \sum_{i=1}^6 \frac{\alpha_i}{\lambda_i} \frac{T_{wi}^2 T_{vi}}{1 - T_{wi}} \left(q - \frac{T_{wi} T_{ai}}{1 - T_{wi}} \right), \quad (1)$$

где N_A – постоянная Авогадро;

A – атомный номер определяемого элемента;

m – масса определяемого элемента в исследуемой пробе;

θ – распространенность изотопа определяемого элемента;

f – плотность потока нейтронов на позиции облучения;

σ_f – сечение деления изотопа определяемого элемента;

ε – эффективность регистрации нейтронов блока регистрации ЗН и γ -квантов;

α_i – выход i -й группы ЗН на акт распада;

i – номер группы ЗН (всего шесть групп ЗН – с периодами полураспада от долей секунды до одной минуты);

λ_i – постоянная распада i -й группы ЗН;

T_{wi} , T_{vi} , T_{ai} и T_{ci} – временные факторы.

Временные факторы определяются временем облучения (измерения) t_o (t_u); временем выдержки после облучения t_v ; длительностью анализа одной пробы – полным временем анализа t_a и длительностью одного цикла t_{ci} :

$$T_{wi} = 1 - e^{-\lambda_i t_u}; \quad T_{vi} = e^{-\lambda_i t_v};$$

$$T_{ai} = 1 - e^{-\lambda_i t_a}; \quad T_{ci} = 1 - e^{-\lambda_i t_{ci}},$$

здесь $q = t_a / t_{ci}$ – число циклов; $t_{ci} = 2t_u + t_v + t_{tp}$ (в предположении, что $t_o = t_u$); t_{tp} – время транспортирования контейнера с пробой из блока ре-

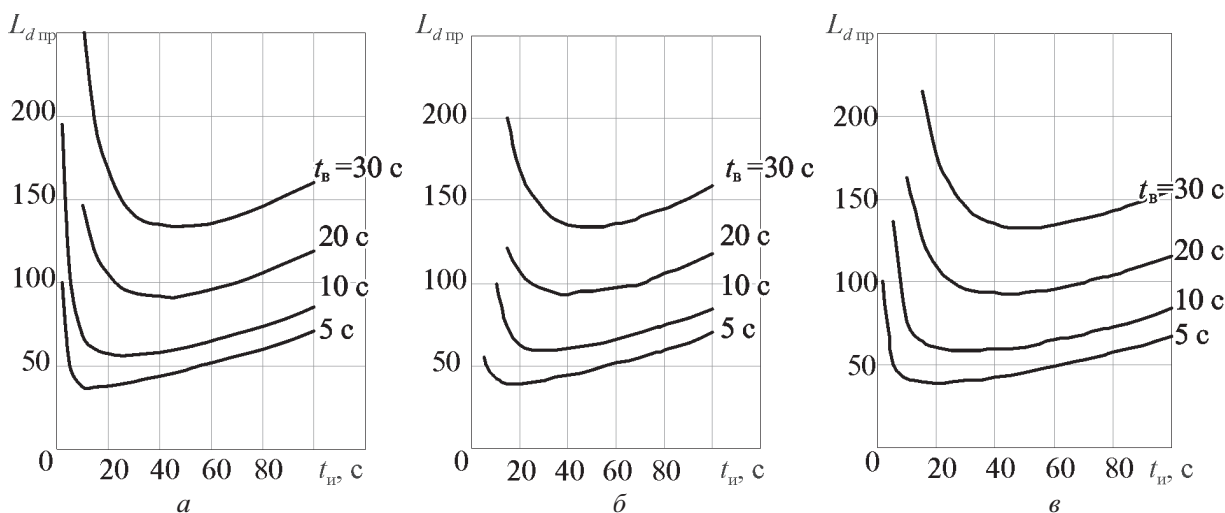


Рис. 1. Зависимость приведенного предела обнаружения $L_{d \text{ пр}}$ от времени измерения t_u для различных значений времени выдержки t_v (5, 10, 20 и 30 с) при времени транспортирования t_{tp} : а – 1 с; б – 2 с; в – 4 с

гистрации ЗН на позицию облучения в канале ядерного реактора.

При оптимизации временного режима ЦМ в качестве критерия использовался минимальный уровень предела обнаружения урана $L_{d\text{ пр}}$. Для определения приведенного предела обнаружения используется формула [2]

$$L_{d\text{ пр}} = \frac{\sqrt{qt_{\text{и}}}}{\sum_{i=1}^6 \frac{\alpha_i}{\lambda_i} \frac{T_{\text{и}}^2 T_{\text{в}}}{1 - T_{\text{и}}} \left(q - \frac{T_{\text{и}} T_{\text{а}}}{1 - T_{\text{и}}} \right)}. \quad (2)$$

На рисунке 1 приведены зависимости $L_{d\text{ пр}}$ от времени измерения $t_{\text{и}}$ для различных фиксированных значений времени выдержки $t_{\text{в}}$ и времени транспортирования $t_{\text{тр}}$ при заданной продолжительности времени анализа $t_{\text{а}} = 600$ с.

Анализ представленных зависимостей позволил сделать следующие основные выводы в отношении времен, используемых при ЦМ:

1) оптимальными являются следующие значения $t_{\text{и}}$, соответствующие минимальному значению $L_{d\text{ пр}}$, в зависимости от $t_{\text{в}}$:

$$t_{\text{и}} \approx 16 \text{ с } (t_{\text{в}} = 5 \text{ с}); \quad t_{\text{и}} \approx 30 \text{ с } (t_{\text{в}} = 10 \text{ с});$$

$$t_{\text{и}} \approx 42 \text{ с } (t_{\text{в}} = 20 \text{ с}); \quad t_{\text{и}} \approx 50 \text{ с } (t_{\text{в}} = 30 \text{ с});$$

2) время транспортирования $t_{\text{тр}}$ практически не влияет на положение минимумов кривых;

3) время выдержки $t_{\text{в}}$ играет определяющую роль – с его ростом снижается число регистрируемых ЗН, и минимумы кривых смещаются в сторону увеличения $t_{\text{и}}$. Это объясняется тем, что с возрастанием времени выдержки практически сводится к нулю вклад наиболее представительной – 4-й группы ЗН и уменьшаются вклады 3-й и 2-й групп в общий счет ЗН.

Следует отметить, что изменение продолжительности анализа $t_{\text{а}}$ весьма слабо влияет на положение минимумов кривых $L_{d\text{ пр}}$, поскольку это изменение сказывается в основном на вкладе 1-й группы ЗН, не являющейся определяющей.

Циклический метод на основе МЗНК. Циклический метод применим с некоторыми ограничениями. Это связано с тем, что многократные облучения исследуемой пробы в реакторе приводят к накоплению в матрице геологической пробы значительной активности γ -радионуклидов.

При использовании ЦМ совместно с методом регистрации ЗН с поправкой на содержание кислорода (МЗНК) измерение ЗН и высокоэнергетических γ -квантов радионуклида ^{16}N производится параллельно. Поэтому при оптимизации временного режима ЦМ необходимо также определить оптимальные условия для активации кислорода.

Оптимизация временного режима ЦМ при определении содержания урана и лития с поправкой на содержание кислорода (МЗНК) проводилась по формулам для нахождения приведенного предела обнаружения [2]:

– урана

$$L_{d\text{ пр}}^{\text{у}} = \frac{\sqrt{qt_{\text{и}}}}{\sum_{i=1}^6 \frac{\alpha_i}{\lambda_i} \frac{T_{\text{и}}^2 T_{\text{тр}}}{1 - T_{\text{и}}} \left(q - \frac{T_{\text{и}} T_{\text{а}}}{1 - T_{\text{и}}} \right)}; \quad (3)$$

– лития и кислорода

$$L_{d\text{ пр}}^{\text{л, к}} = \frac{\sqrt{qt_{\text{и}}} (1 - T_{\text{и}})}{T_{\text{и}}^2 T_{\text{тр}} \left(q - \frac{T_{\text{и}} T_{\text{а}}}{1 - T_{\text{и}}} \right)}. \quad (4)$$

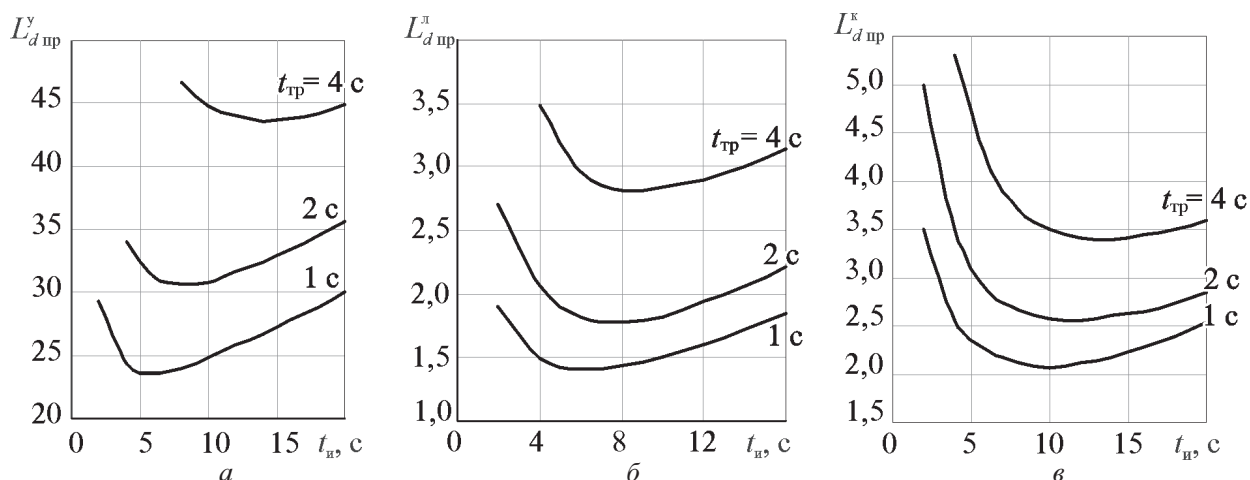


Рис. 2. Зависимости $L_{d\text{ пр}}$ от $t_{\text{и}}$ при $t_{\text{тр}} = 1; 2$ и 4 с, полученные с использованием МЗНК в режиме ЦМ при определении содержания:

а – урана; б – лития; в – кислорода

Соотношение (3) отличается от формулы (2) измененным экспоненциальным множителем: $T_{\text{в}i}$ заменен на $T_{\text{т}pi} = 1 - e^{-\lambda_i t_{\text{т}p}}$.

Расчеты по формулам (3) и (4) были проведены для значений времени транспортирования $t_{\text{т}p} = 1; 2$ и 4 с при общем времени анализа одной пробы $t_a = 180$ с. На рисунке 2 представлены результаты расчетов – зависимости приведенных пределов обнаружения урана L_d^y (рис. 2, а), лития L_d^l (рис. 2, б) и кислорода L_d^k (рис. 2, в) от времени измерения $t_{\text{и}}$ при различных значениях времени транспортирования.

Оптимальные расчетные значения времени измерения (облучения) сведены в табл. 1.

Таблица 1

Оптимальные значения времени измерения для ЦМ применительно к МЗНК, полученные по расчетным кривым

Время транспортирования $t_{\text{т}p}, \text{с}$	Оптимальные значения времени измерения $t_{\text{и}}, \text{с}$		
	уран	литий	кислород
1	6,0	7,0	10,0
2	8,5	8,0	12,0
4	14,0	9,0	13,8

Очевидно, что с увеличением времени транспортирования оптимальные значения времени измерения (облучения) возрастают. При времени транспортирования $t_{\text{т}p} = 4$ с условия определения содержания урана с помощью ЦМ на основе МЗНК практически идеальные: оптимальные значения времени измерения (облучения) для урана и кислорода почти совпадают, что дает возможность снизить погрешность определения поправки на содержание кислорода, и значит минимизировать погрешность определения урана.

Что касается анализа на содержание лития (см. рис. 2, б), то можно сказать, что оптимальные значения времен измерения (облучения) для лития и кислорода несколько отличаются. Однако характер кривых, описывающих L_d^l и L_d^k (широкие сглаженные минимумы), позволяет выбрать компромиссное значение оптимального времени измерения (облучения) при определении содержания лития с использованием ЦМ на основе МЗНК – $t_{\text{и}} = t_o = 11$ с.

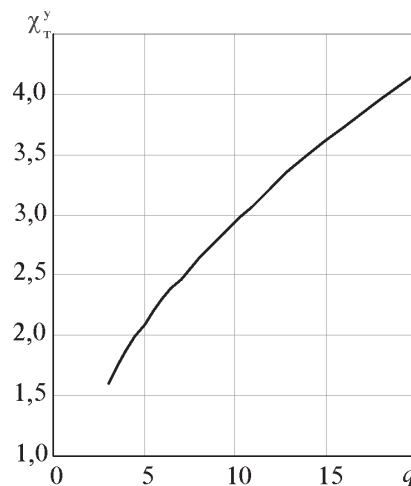


Рис. 3. Зависимость числа циклов q от отношения стандартных отклонений χ_y^y , полученных при использовании ЦМ МЗН и в традиционном режиме МЗН при анализе на содержание урана

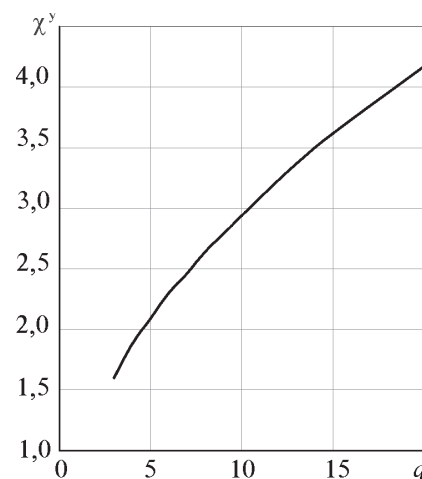


Рис. 4. Зависимость числа циклов от отношения стандартных отклонений χ_y^y , полученных при использовании ЦМ МЗНК и МЗНК при анализе на содержание урана

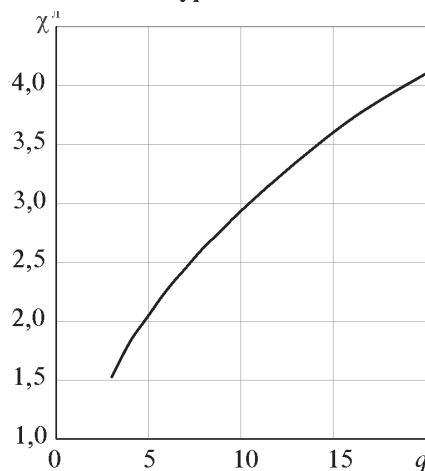


Рис. 5. Зависимость числа циклов от отношения стандартных отклонений χ_l^l , полученных при использовании ЦМ МЗНК и МЗНК при анализе на содержание лития

Оценка числа циклов облучения

Оценку числа циклов q , необходимого для достижения определенного уровня погрешности анализа, можно провести по кривым, приведенным на рис. 3 и 4 для случая определения содержания урана, и на рис. 5 – при анализе содержания лития.

Кривые построены с использованием следующих соотношений:

– при анализе на содержание урана

$$\chi_{\tau}^y = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^6 \frac{\alpha_i}{\lambda_i} \frac{T_{иц}^2}{1-T_{иц}} \left(q - \frac{T_{иц} T_{ai}}{1-T_{иц}} \right)}{\sum_{i=1}^6 \frac{\alpha_i}{\lambda_i} T_{иц}^2 T_{три}}}, \quad (5)$$

– при определении концентрации лития

$$\chi_{\tau}^l = \frac{T_{иц}}{T_{иц}} \sqrt{\frac{1}{1-T_{иц}} \left(q - \frac{T_{иц} T_a}{1-T_{иц}} \right)}. \quad (6)$$

Здесь χ_{τ}^y – расчетное отношение стандартных отклонений, полученных в режиме ЦМ, к стандартным отклонениям – результату обычного одноциклового режима анализа для урана с использованием традиционного МЗН; χ_{τ}^l – расчетное отношение стандартных отклонений, полученных в режиме ЦМ, к результату обычного одноциклового режима анализа для лития с использованием МЗНК. Расчетное отношение стандартных отклонений, полученных в режиме ЦМ, к стандартным отклонениям – результату одноциклового режима анализа для урана с использованием МЗНК – χ^y определяется также по формуле (5).

Соотношения (5) и (6) получены в предположениях, что погрешность анализа обусловлена главным образом случайной составляющей погрешности и счетная статистика подчиняется распределению Пуассона. Учитывалось также, что полная длительность анализа t_a при реализации ЦМ мало сказывается на оптимальном значении времени измерения (облучения).

Использование ЦМ, как уже отмечалось, целесообразно для получения более надежных результатов при анализе материалов с содержаниями определяемых элементов, близких к пределу обнаружения, а также в случаях, когда необходима более высокая точность определения, и при работе реактора на пониженной мощности.

Очевидно, что при этом длительность процедуры анализа не должна иметь определяю-

щего значения: число циклов при реализации ЦМ должно соответствовать поставленной задаче обеспечения более высоких параметров надежности и точности анализа.

Оценка уровня γ -активности циклически облучаемой в реакторе пробы

При реализации ЦМ для анализа геологических объектов необходимо оценить уровень γ -активности циклически облучаемой в реакторе анализируемой пробы.

Как показано в ряде исследований [3–5], γ -активность геологического образца после кратковременного облучения (~ 1 мин и менее) в реакторе обусловлена главным образом γ -излучением радионуклида ^{28}Al , что связано с высоким (иногда до 20 %) содержанием Al в геологических образованиях и совокупностью его ядерно-физических характеристик [6]. Поэтому при эксплуатации блока регистрации ЗН и γ -квантов со счетчиками СНМ-18 [7] необходимо было оценить активность γ -радионуклидов облученной в реакторе пробы.

С этой целью рассчитывались отношения активности $\gamma(q)$ радионуклида ^{28}Al , как функции числа циклов, индуцированной при использовании:

- оптимизированного временного режима ЦМ на основе МЗН ($A_{\text{Al ЦМ МЗН}}$) к активности этого радионуклида, наведенной при реализации МЗН ($A_{\text{Al МЗН}}$)

$$\gamma_1 = \frac{A_{\text{Al ЦМ МЗН}}}{A_{\text{Al МЗН}}} \frac{\frac{T_{иц}^2 T_{в}}{1-T_{иц}} \left(q - \frac{T_{иц} T_a}{1-T_{иц}} \right)}{(1-T_{иц}^2) T_{в}}; \quad (7)$$

- оптимизированного временного режима ЦМ на основе МЗНК ($A_{\text{Al ЦМ МЗНК}}$) к γ -активности ^{28}Al , возбуждаемой при реализации МЗНК ($A_{\text{Al МЗНК}}$)

$$\gamma_2 = \frac{A_{\text{Al ЦМ МЗНК}}}{A_{\text{Al МЗНК}}} \frac{\frac{T_{иц}^2 T_{тр}}{1-T_{иц}} \left(q - \frac{T_{иц} T_a}{1-T_{иц}} \right)}{(1-T_{иц}^2) T_{тр}}; \quad (8)$$

- оптимизированного временного режима ЦМ на основе МЗНК ($A_{\text{Al ЦМ МЗНК}}$) к активности ^{28}Al при реализации МЗН ($A_{\text{Al МЗН}}$):

$$\gamma_3 = \frac{A_{\text{Al ЦМ МЗНК}}}{A_{\text{Al МЗН}}} \frac{\frac{T_{иц}^2 T_{тр}}{1-T_{иц}} \left(q - \frac{T_{иц} T_a}{1-T_{иц}} \right)}{(1-T_{иц}^2) T_{в}}. \quad (9)$$

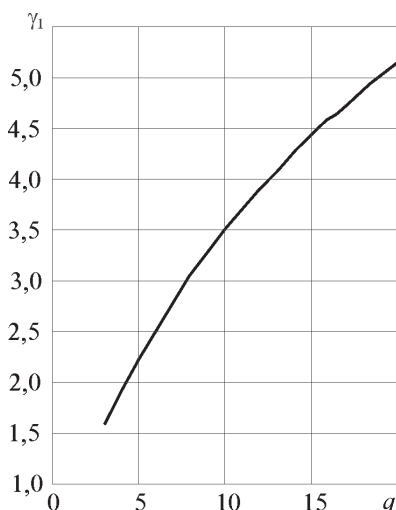


Рис. 6. Изменение отношения активностей γ_1 радионуклида ^{28}Al в зависимости от числа циклов q

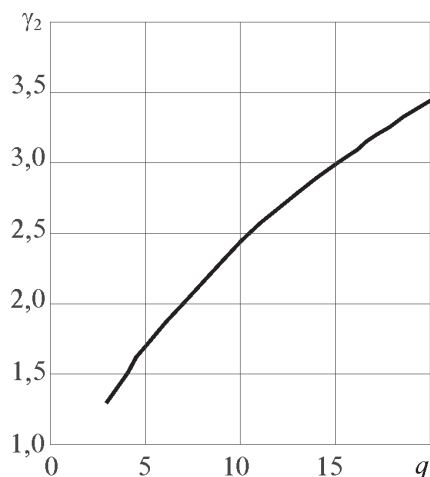


Рис. 7. Изменение отношения активностей γ_2 радионуклида ^{28}Al в зависимости от числа циклов q

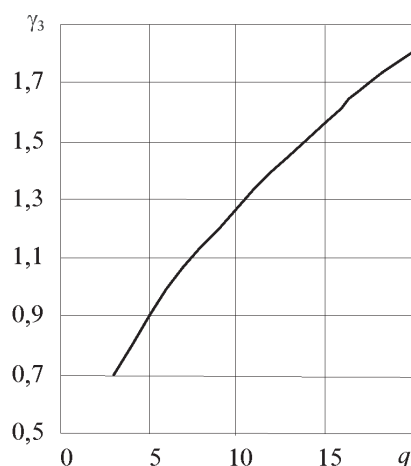


Рис. 8. Изменение отношения активностей γ_3 радионуклида ^{28}Al в зависимости от числа циклов q

В расчетах принималось:

для МЗН $t_n = t_o = 60$ с; $t_b = 20$ с;

для ЦМ МЗН $t_n = t_o = 42$ с; $t_b = 20$ с;

для ЦМ МЗНК $t_n = t_o = 20$ с; $t_{тр} = 4$ с.

Полученные кривые представлены на рис. 6–8.

С помощью зависимостей (7)–(9) можно сопоставить результирующую активность радионуклидов пробы с предельно возможной активностью ^{28}Al (5 Р/ч) [8], рассчитанной для плотности потока тепловых нейтронов реактора $\phi \sim 1 \cdot 10^{13} \text{ см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$ и содержания $\text{Al} \sim 10\%$, и руководствоваться этим сопоставлением при выборе числа циклов.

При использовании модификации блока регистрации ЗН и γ -квантов со счетчиками СНМ-11 (с твердым борным покрытием) учитывать активность γ -радионуклидов пробы при реализации ЦМ нет необходимости, и при выборе числа циклов следует руководствоваться требованиями поставленной задачи.

Циклический метод на основе МЗН был использован для повышения точности определения содержания урана в осадочных породах при работе реактора на пониженном уровне мощности при плотности потока тепловых нейтронов $\phi \sim 2 \cdot 10^{12} \text{ см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$.

Число циклов $q = 12$ было определено по кривой, представленной на рис. 7, с целью обеспечения точности определения, близкой к достигаемой с помощью МЗН при плотности потока тепловых нейтронов $\phi \sim 1 \cdot 10^{13} \text{ см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$.

При выборе числа циклов контролировалась результирующая активность γ -радионуклидов неоднократно облучаемой пробы, которая не должна была превышать предельного значения для ^3He -счетчиков, рассчитанного для содержания Al в пробе, соответствующего среднему значению концентрации в осадочных породах (10,5 %), и потока тепловых нейтронов $\phi \sim 1 \cdot 10^{13} \text{ см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$ [6]. Для этого пробы исследуемого материала предварительно анализировались на содержание урана и породообразующих элементов по методике, описанной в работах [5, 7]. С использованием полученных данных о содержании Al и расчетной зависимости, приведенной на рис. 6, оценивались возможные уровни γ -активности проб, подлежащих анализу ЦМ.

Экспериментальные исследования с использованием ЦМ

Экспериментальные исследования проводились на многоцелевой установке «Анис», смон-

тированной на исследовательском ядерном реакторе ИРТ-Т Томского политехнического института.

Определение содержания урана. В экспериментах анализировались три пробы: НТ-421, НТ-433 и НТ-451 с процентными содержаниями урана и алюминия соответственно $0,5 \cdot 10^{-4}$ и 6,8 %; $0,6 \cdot 10^{-4}$ и 2,4 %; $0,7 \cdot 10^{-4}$ и 4,5 % (пробы отложений васюганской свиты по керну скважины 248 Первомайского месторождения нефти).

Анализ проводился в соответствии с рекомендованным оптимальным временным режимом: $t_o = t_n = 42$ с; $t_{тр} = 4$ с; $t_b = 20$ с при потоке тепловых нейтронов $\Phi \sim 2 \cdot 10^{12}$ см $^{-2}$ ·с $^{-1}$. Результаты анализа по ЦМ на основе МЗН приведены в табл. 2. Там же указаны содержание Al и уровень активности γ -радионуклидов по отношению к установленному предельно допустимому уровню, а также стандартные отклонения содержания урана по измеренным данным, характеризующее точность определения.

Представленные в таблице результаты показывают, что использование ЦМ на основе МЗН дает возможность за счет увеличения счетной статистики существенно улучшить точность определения содержания урана. Однако при регистрации ЗН с использованием ^3He -счетчиков необходимо контролировать уровень γ -активности анализируемой пробы.

Для сопоставления результатов, полученных с использованием ЦМ на основе МЗН, с результатами, полученными при реализации ЦМ на основе МЗНК, были взяты пробы тех же образцов, а также пробы кернов НТ-435, НТ-441, НТ-449 и НТ-463, предварительно проанализированные по методике совместного определения урана и породообразующих элементов [5, 7].

Облучение проб проводилось при плотности потока тепловых нейтронов $\Phi \sim 2 \cdot 10^{12}$ см $^{-2}$ ·с $^{-1}$. Число циклов $q = 20$ было определено с использованием кривых, приведенных на рис. 4 и рис. 6. По этим кривым

Таблица 2

Результаты определения концентраций урана в пробах НТ-421, НТ-433 и НТ-451 с использованием ЦМ на основе МЗН

Номер пробы	Число циклов q (временной режим анализа)	Содержание Al, %	Уровень активности γ -радионуклидов по отношению к предельному	Концентрация урана n , 10^{-4} %	Стандартное отклонение содержания урана, %
НТ-421	12 ($t_o = t_n = 42$ с; $t_b = 20$ с; $t_{тр} = 4$ с)	6,8	0,55	0,51 (0,5)	2,5 (9,0)
НТ-433		2,4	0,19	0,59 (0,6)	2,3 (8,2)
НТ-451		4,5	0,36	0,72 (0,7)	2,1 (7,4)

Примечание: в скобках приведены результаты одноциклового анализа проб при тех же условиях.

Таблица 3

Результаты определения концентраций урана в пробах НТ-421, НТ-433, НТ-451, НТ-435, НТ-441, НТ-449 и НТ-463 с помощью ЦМ на основе МЗНК

Номер пробы	Число циклов q (временной режим анализа)	Содержание Al, %	Уровень активности γ -радионуклидов по отношению к предельному	Концентрация урана n , 10^{-4} %	Стандартное отклонение содержания урана, %
НТ-421	20 ($t_o = t_n = 14$ с; $t_{тр} = 4$ с)	6,8	0,23	0,50 (0,5)	2,8 (9,0)
НТ-433		2,4	0,08	0,58 (0,6)	2,6 (8,0)
НТ-451		4,5	0,16	0,72 (0,7)	2,5 (7,5)
НТ-435		7,2	0,25	0,51(0,5)	2,6 (8,4)
НТ-441		6,2	0,21	0,69 (0,7)	2,5 (7,5)
НТ-449		5,1	0,18	0,93 (0,95)	2,2 (7,0)
НТ-463		12,8	0,44	4,95 (5,0)	1,2 (4,0)

Примечание: в скобках приведены результаты одноциклового анализа проб при тех же условиях.

оценивалась степень улучшения точности по сравнению с МЗНК, а также контролировался уровень активности γ -радионуклидов пробы. Следует отметить, что в случае применения МЗНК проблема активности γ -радионуклидов не столь актуальна, как для МЗН, однако пренебрегать ею нельзя.

Временной режим анализа ЦМ на основе МЗНК соответствовал рекомендуемому оптимальному: $t_{\text{и}} = t_{\text{о}} = 14$ с; $t_{\text{тр}} = 4$ с.

Результаты анализа всех семи геологических проб на содержание урана с использованием ЦМ на основе МЗНК представлены в табл. 3.

Как и в случае ЦМ на основе МЗН, в этой таблице приведены содержание Al и уровень активности γ -радионуклидов относительно предельно допустимого, а также стандартные отклонения, рассчитанные по экспериментальным данным при определении содержания урана.

Представленные в таблице результаты позволяют сделать вывод, что данные о содержании урана в измеренных пробах, полученные с использованием ЦМ на основе МЗНК, очень хорошо согласуются с результатами, полученными с помощью МЗН и ЦМ на основе МЗН. Кроме того, значения стандартного отклонения, характеризующего точность определения, практически не отличается от значений стандартного отклонения, полученных при реализации ЦМ на основе МЗН.

Несомненным достоинством ЦМ на основе МЗНК при определении содержания урана является незначительная, по сравнению с ЦМ на основе МЗН, γ -активность исследуемых проб.

Определение содержания лития. Циклический метод на основе МЗНК применительно к определению содержания лития был использован при анализе проб четырех искусственных

образцов с целью повышения точности анализа. В этом случае контролировать уровень активности γ -радионуклидов, накапливающейся в пробах при многократных циклических облучениях, не было необходимости, поскольку основу матрицы анализируемых образцов составляли кремний и кислород, сравнительно слабо активируемые реакторными нейтронами.

Облучения проводились при плотности потока тепловых нейтронов $\phi \sim 1 \cdot 10^{13} \text{ см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$. Число циклов было выбрано равным 10 с использованием зависимости (см. рис. 5), устанавливающей степень повышения точности определения лития с помощью ЦМ относительно одноциклового анализа.

Временной режим анализа соответствовал рекомендуемому оптимальному: $t_{\text{и}} = t_{\text{о}} = 11$ с при $t_{\text{тр}} = 4$ с. Результаты анализа с использованием ЦМ четырех проб искусственных порошковых образцов с процентными содержаниями лития 0,08; 0,21; 0,71 и 1,12 % приведены в табл. 4.

Данные, представленные в табл. 4, позволяют сделать выводы, что измеренные с использованием ЦМ на основе МЗНК содержания лития хорошо согласуются с концентрациями лития в искусственных образцах; использование ЦМ позволяет существенно улучшить точность анализа, в частности для проб с меньшими концентрациями.

Заключение

Проведенные исследования показали, что применение ЦМ дает возможность повысить чувствительность и точность определения:

1) при анализе концентраций урана в природных материалах (горных породах, минералах, вулканических выбросах, океанических донных отложениях, метеоритах и т.д.)

Таблица 4

Результаты определения содержания лития в пробах Л-1, Л-2, Л-3 и Л-4 порошковых образцов – смесей гидроокиси лития LiOH и двуокиси кремния SiO₂

Номер пробы	Число циклов q (временной режим анализа)	Содержание лития в образце, %	Измеренное содержание лития, %	Стандартное отклонение, %	Степень улучшения точности *
Л-1	10 ($t_{\text{и}} = t_{\text{о}} = 11$ с; $t_{\text{тр}} = 4$ с)	0,08	0,09	3,2	2,4
Л-2		0,21	0,20	2,1	2,2
Л-3		0,71	0,70	1,4	2,0
Л-4		1,12	1,11	< 1	1,8

* По сравнению с одноцикловым анализом при тех же условиях.

на уровнях концентраций, близких к пределу обнаружения для одноциклового методики (на кларковом и закларковом уровнях), при работе реактора на пониженной мощности;

2) при измерении концентраций лития в некоторых природных образованиях и технологических продуктах.

Однако следует отметить, что реализуемый с использованием ядерного реактора метод определения ЗН применительно к анализу содержаний лития требует дополнительных исследований. Эти исследования связаны с влиянием на результаты анализа гомогенности изучаемых геологических и технологических проб (зависимость результатов измерения от крупности частиц пробы), их фазового и химического [6] состава, а также с минералогическим эффектом.

Список литературы

1. *Spyrou N.M.* Cyclic activation analysis: a review // *J. Radioanal. Chem.* 1981. Vol. 61. No. 1–2. P. 211–242.
2. *Галстян И.Л., Чулкин В.Л.* Аналитические возможности установки «Анис» // *Вопросы атомной науки и техники. Сер.: Техническая физика и автоматизация.* 2001. Вып. 55. С. 58–65.
3. *Amiel S.* Analytical applications of delayed neutron emission in fissionable elements // *Anal. Chem.* 1962. Vol. 34. No. 13. P. 1683–1692.
4. *Gale N.H.* Development of delayed neutron techniques as rapid and precise method for determination of uranium and thorium of trace levels in rocks and minerals, with applications to isotope geochronology. Radioactive dating and methods of low level counting // *Proc. of a Symposium. Monaco, 2–10 March 1967. IAEA. Vienna.*
5. *Вертман Е.Г., Мещеряков Р.П., Столбов Ю.М.* Экспрессный неразрушающий метод определения кларковых содержаний урана и тория в геологических объектах по запаздывающим нейтронам // *Ядерно-физические методы в геологии.* – Новосибирск: ИГ СО АН СССР. 1975. С. 54–63.
6. *Бадретдинов Т.Х., Галстян И.Л., Чулкин В.Л.* Исследование метрологических характеристик установки «Анис» при анализе на содержание основных петрогенных элементов // *Вопросы атомной науки и техники. Сер.: Радиационная техника.* 1991. Вып. 2 (45). С. 26–33.
7. *Галстян И.Л., Чулкин В.Л.* Анализ на содержание лития с использованием блока регистрации запаздывающих нейтронов и γ -квантов // *Вопросы атомной науки и техники. Сер.: Техническая физика и автоматизация.* 2001. Вып. 55. С. 37–57.
8. *Бовин В.П.* Влияние дестабилизирующих факторов на определение концентрации борной кислоты // *Вопросы атомной науки и техники. Сер.: Радиационная техника.* 1980. Вып. 19. С. 149–152.

Материал поступил в редакцию 30.04.12

ГАЛСТЯН Игорь Леонович

E-mail: gil2@mail.msiu.ru
Тел.: (495) 454-14-21

Кандидат технических наук, доцент кафедры физики Московского государственного индустриального университета (МГИУ). Сфера научных интересов – прикладная ядерная физика. Автор 32 научных трудов.

ЛЕОНТЬЕВ Алексей Борисович

E-mail: lab2@mail.msiu.ru
Тел.: (495) 313-99-13

Кандидат физико-математических наук, доцент кафедры физики МГИУ. Сфера научных интересов – оптика рассеивающих сред. Автор 26 научных трудов.