

3-44

У-Р

158/—

КИЕВСКИЙ ГОСУДАРСТВЕННЫЙ ПЕДАГОГИЧЕСКИЙ
ИНСТИТУТ им. А. М. ГОРЬКОГО

С. Т. ЗВОЛЬСКИЙ

ОПРЕДЕЛЕНИЕ ОТНОСИТЕЛЬНОГО
СОДЕРЖАНИЯ ИЗОТОПОВ
В ДВУКОМПОНЕНТНЫХ МАЛОАКТИВНЫХ
СМЕСЯХ МЕТОДОМ ПОГЛОЩЕНИЯ β -ЛУЧЕЙ

Автореферат
диссертации на соискание ученой степени
кандидата физико-математических наук

Научный руководитель — доцент, кандидат физико-
математических наук

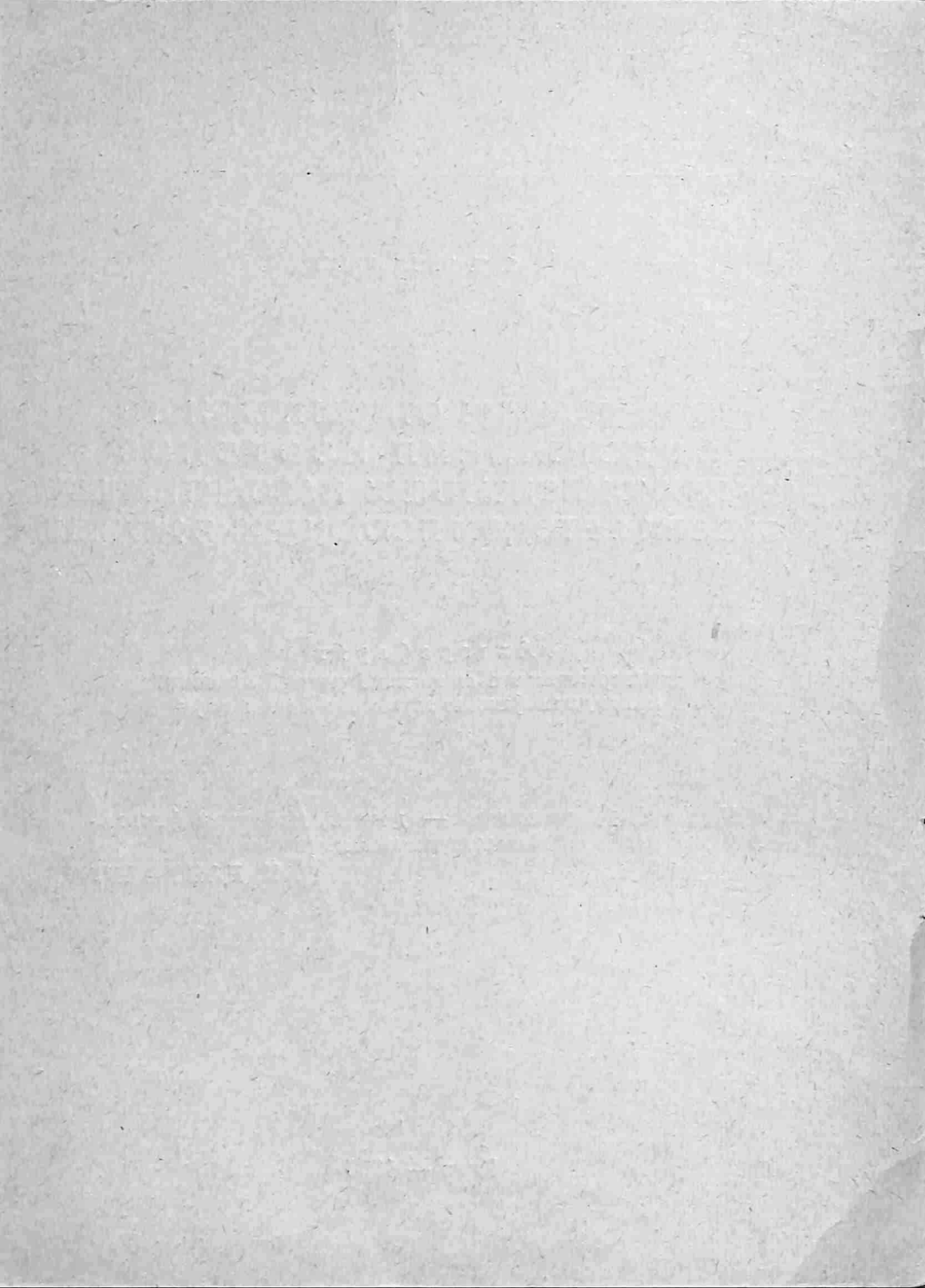
А. И. ДАНИЛЕНКО

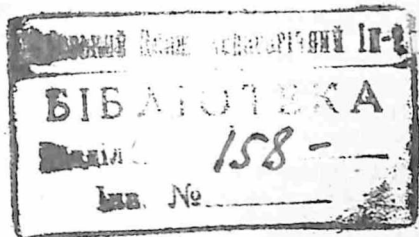
Киев — 1956

НБ НПУ
імені М.П. Драгоманова



100313085





рукопись

76

В директивах XX съезда Коммунистической партии Советского Союза по шестому пятилетнему плану развития народного хозяйства на 1956—1960 гг. поставлена задача всемерного развития работ по дальнейшему применению атомной энергии в мирных целях. Наряду со строительством мощных атомных электростанций предусмотрено широкое использование радиоактивных излучений и меченых атомов в промышленности, сельском хозяйстве, медицине и научно-исследовательских работах ¹.

Использование высокочувствительного метода радиоактивных изотопов ускорило и облегчило изучение процессов производства чугуна и стали, изучение и контроль деталей машин, режущих инструментов, усовершенствовало технику измерения, содействовало разработке и изучению наиболее выгодных способов использования удобрений в сельском хозяйстве.

Важным шагом в развитии метода радиоактивных изотопов является одновременное использование двух и больше изотопов, на что указывает П. Е. Дьяченко («Методы изучения и контроль износа в машинах при помощи радиоактивных изотопов», изд. АН СССР, 1954), Б. Д. Грозин («Применение радиоактивных изотопов для изучения износа деталей машин». Доклады, представленные СССР на Международную конференцию по мирному использованию атомной энергии, М., 1955).

При одновременном использовании нескольких изотопов возникает необходимость простыми физическими методами определять состав излучения изотопной смеси, которая попадает в исследуемые пробы.

Разработанные до настоящего времени физические методы анализа изотопной смеси еще не дают исчерпывающего решения этой задачи, по крайней мере для малоактивных смесей.

¹ Директивы XX съезда Коммунистической партии Советского Союза по шестому пятилетнему плану развития народного хозяйства на 1956—1960 годы. Госполитиздат, 1956.

Цель данной работы и состоит в том, чтобы в некоторой степени продолжить решение задачи анализа излучения изотопной смеси, а именно, разработать метод анализа двукомпонентной семи β -излучателей, активность которых имеет порядок 10^{-10} кюри.

Диссертация состоит из вступления, трех глав, общих выводов, приложения и перечня использованной литературы.

I

В первой главе, на основании изучения литературных источников, рассмотрены существующие методы изучения радиоактивного излучения с точки зрения возможного применения их к анализу малоактивной смеси изотопов и обосновывается метод поглощения β -лучей, с помощью которого решалась поставленная в работе задача.

На основании обзора литературных источников показано, что вопрос разделения радиоактивной смеси возник одновременно с открытием явления естественной радиоактивности. Для выделения и дальнейшего изучения отдельных радиоактивных элементов обычно пользуются физико-химическими методами. Однако такие методы, как правило, чрезвычайно громоздки и поэтому не всегда могут быть использованы для практических целей.

В ряде случаев анализ радиоактивной смеси сводится лишь к определению и количественной оценке отдельных радиоактивных компонентов. Показано, что такое определение можно осуществить сравнительно простыми физическими методами. До последнего времени физические методы анализа, которые основываются на отличиях в излучении отдельных радиоактивных веществ, разрешали только определять процентное содержание U, Th, Ra в радиоактивных рудах. Так, еще в 1921 г. М. Кюри (С. R. 172, 1022, 1921) предложила проводить анализ смесей Ra и MsTh комбинированным методом, в котором учитывается тепловое действие прежде всего α -лучей и интенсивность γ -излучения. Но в связи с трудностями точного измерения тепловых эффектов этот метод не нашел применения. И. М. Франк (ЖТЭФ т. XV, вып. I — 1945), для анализа радиоактивной смеси по ее γ -излучению, разработал метод компенсационных камер с селективной чувствительностью, который разрешает с точностью 2—6% определять содержание Ra, MsTh и RaTh в препаратах радиоактивной смеси. Однако наиболее усовершенствованным методом является способ определения содержания в радиоак-

тивных рудах U, Th и Ra, разработанный Г. В. Гольбеком, В. В. Матвеевым и Р. С. Шляпниковым («Физический метод определения содержания урана, радия и тория в радиоактивных рудах». Доклады, представленные СССР на Международную конференцию по мирному использованию атомной энергии, М., 1955). Анализ производился комбинацией измерений по β - и разделенному по энергиям γ -излучениям. Относительная точность измерения оценивается в 5—10% от содержания искомым компонентов при концентрации их в рудах большей 1%.

В некоторых случаях путем комбинации измерений по β - и γ -излучениям можно также проводить определение U и Th в радиоактивных рудах, в которых U может быть в неравновесном состоянии с продуктами своего распада (Eichholz G. G., Hilborn J. W., Mc Mahon C., Canad. J. Phys. 1953, 31, № 4, 613—628). Меньшего внимания заслуживают фотографические методы анализа радиоактивных руд на содержание в них U и Th, описанные в последние годы в зарубежной литературе.

* * *

Особое распространение получил метод поглощения, который оказался наиболее простым, доступным и во многих случаях достаточно точным методом изучения радиоактивных излучений. Метод поглощения определился сразу же после открытия радиоактивных явлений и сыграл важную роль в их изучении. С 1914 г. (O. Hahn, Strahlentherapie 4, 154, 1914, LeRadium 11, 71, 1914) делаются попытки использования метода поглощения для определения состава радиоактивной смеси. Сущность метода поглощения заключается в следующем. Как известно, при прохождении радиоактивного излучения через фильтры из произвольного материала, интенсивность его вследствие взаимодействия с отдельными атомами вещества фильтров уменьшается. Характер взаимодействия излучения с веществом зависит от его вида и спектрального состава. Но в связи с тем, что разные радиоактивные вещества испускают характерные лишь для них излучения, то и законы поглощения этого излучения будут разные и характерные лишь для данных веществ. Именно это и дает возможность проводить анализ радиоактивных смесей по законам поглощения их излучения. Взаимодействие β -лучей часто используется как статочно полно и удовлетворительно описывается квантовой механикой, а метод поглощения — лучей часто используется как контрольный при определении основной константы, максимальной энергии E_n электронов β -спектра.

Обзор существующих методов изучения радиоактивного излучения привел нас к выводу, что именно метод поглощения дает возможность изучать излучения малоактивных (порядка 10^{-10} кюри) проб радиоактивной смеси, притом с помощью сравнительно простых приборов. С другой стороны, метод поглощения уже широко используется для анализа концентрированных радиоактивных руд на содержание в них U, Ra, Th, а также для графического анализа концентрированной двухкомпонентной смеси изотопов с β -излучением. Сначала в этом методе использовалось лишь γ -излучение (O. Hahn, S. Meyer, U. v. Hess, W. Bothe), а в последующих работах, с усовершенствованием измерительной аппаратуры, все в большей мере использовалось β -излучение (J. H. Hummel, R. Evans, Г. В. Горшков и Н. П. Староватов, Б. И. Стыро и другие). Б. И. Стыро в своей диссертационной работе (Исследование законов поглощения неомогенных потоков β - и γ -лучей и возможность определения содержания U и Th в рудах по их излучению. Л., 1945), пользуясь счетчиком Гейгера-Мюллера с тонкостенной цилиндрической трубкой, впервые выделил β -излучение и провел по законам его поглощения анализ радиоактивной руды на содержание в ней U и Th.

* * *

В последние годы с развитием метода радиоактивных изотопов, которое привело к одновременному применению двух и больше изотопов, возникла задача анализа излучения смеси с помощью простых физических способов. Однако в решении этой задачи сделаны лишь первые шаги. К ним можно отнести описанные в литературе по радиохимии методы анализа смеси радиоактивных изотопов по кривой их распада и по кривой поглощения, в случае смеси, испускающей β -лучи.

Однако метод анализа по кривой распада даже в двухкомпонентной смеси изотопов с большим различием между периодами их полураспада T не обеспечивает достаточной точности определения отдельных компонентов. Кроме того, для проведения анализа по законам распада требуются большие промежутки времени.

Метод графического анализа кривой поглощения, который дает возможность анализировать двухкомпонентную смесь изотопов с β -излучением, аналогичен методу графического анализа кривой распада смеси радиоактивных изотопов. Активность отдельных изотопов характеризуется точками пересечения линий, на которые разлагается экспериментальная кривая поглощения β -лучей смеси, с осью ординат, по которой отсчитывается в соот-

ветствующем масштабе интенсивность β -излучения. Однако в этот метод может быть использован лишь для анализа концентрированных смесей с большим различием между максимальными энергиями β -спектров отдельных изотопов.

Значительно лучшие результаты дает предложенный R. E. Connally и M. V. Leboeuf (*Analyt. Chem.*, 1953, 25, № 7, 1095—1100) метод анализа изотопной смеси по ее γ -излучению. Их метод разрешает анализировать трикомпонентные изотопные смеси с точностью до 7% при величине активности отдельных компонентов, равной от 10 до 70% от общей активности смеси.

Препятствием широкому использованию этого метода для практических целей является применение такой сравнительно сложной аппаратуры, как сцинтиляционные детекторы с самозаписывающим спектрометром. Кроме того, при близком значении энергии γ -излучения отдельных изотопов смеси определение их активности β - и γ -сцинтиляционными детекторами становится невозможным.

II

Во второй главе описывается счетная установка и ее апробация, исследуемые радиоактивные препараты и метод обработки опытных данных.

Для осуществления анализа двухкомпонентной малоактивной смеси по методу поглощения и самопоглощения ее излучения нами изготовлена счетная установка, которая обеспечила высокую точность измерения. Усиление напряжения разрядных импульсов до величины, достаточной для работы лампового реле (тиратрон), которое включало электромеханический нумератор, выполнялось однокаскадным усилителем реостатного типа, составленным на лампе 6Ж4. Использование в изготовленной счетной установке минимального числа электронных ламп, хорошая экранировка основных узлов и стабилизация напряжения обеспечили малую чувствительность установки к колебаниям напряжения в сети и к искровым разрядам. Конструктивной особенностью изготовленной нами торцовой трубки было уменьшение ее рабочего объема за счет сокращения длины рабочей части внутреннего электрода. Это привело к значительному уменьшению фона (80—110 отсчетов за 10 минут), что, в свою очередь не уменьшая эффективности счета, содействовало измерению слабых интенсивностей с большей точностью. Для проведения анализа по методу поглощения использовались алюминиевые фильтры, которые помещались в специальный суппорт. Суппорт вместе с фильтрами и образцом мог помещаться над счетной трубкой лишь в определен-

ном положении, что исключало какое-либо изменение геометрии опыта.

Апробация изготовленной аппаратуры проводилась на примере образцов UX_2 , P^{32} и RaE , активность которых имела порядок 10^{-10} кюри. Для этого из изотопов UX_2 и P^{32} изготовлялись образцы с известной активностью. Эти же образцы проверялись на активность применяемой аппаратурой. Кроме того, нами сравнивались экспериментальные кривые поглощения β -излучения чистых β -излучателей P^{32} и RaE с кривыми поглощения, вычисленными теоретически. При учете всех возможных экспериментальных ошибок, включая и статистические, относительная ошибка анализа β -излучения использованных образцов по нашей оценке заключалась в пределах 8%.

* * *

Решение задачи анализа двухкомпонентных малоактивных смесей по методу поглощения их β -излучения осуществлялось нами на примере смеси изотопов UX_2 и RaE , UX_2 и K^{40} , P^{32} и Rb^{86} . Величина максимальной энергии E_m этих изотопов имеет такой же порядок, как и у большинства изотопов, которые используются в практических целях и в научно-исследовательских работах. Кроме того, смесь изотопов Rb^{86} и P^{32} характеризуется неблагоприятным (близким к единице) соотношением между максимальными энергиями E_m их β -спектров (1,718 и 1,82 Мев). Препаратом тонких образцов служили растворы солей этих изотопов, которые равномерно наносились на поверхность образца. Для получения препарата, из которого изготовлялись толстые образцы, радиоактивное вещество в виде раствора равномерно вносилось в кварцевый песок фракции 0,25—0,50 мм., который предварительно тщательно очищался. Чтобы уменьшить влияние явления обратного рассеяния на результаты опытов, все исследуемые образцы изготовлялись в картонных цилиндрических формах одинакового диаметра. Дно формы, которое служило рабочей поверхностью, изготовлялось из пропарафиненной бумаги толщиной 5 мг/см². Верхняя поверхность препарата в таких формах была открытой.

Обработка опытных данных, которая заключалась в определении процентного содержания отдельных компонентов в образце смеси по его измеренному β -излучению проводилась предложенным в работе методом, который сводился к решению системы двух линейных алгебраических уравнений. Общее решение этой системы уравнений по своей форме эквивалентно соотношению Ботэ, разработанному для анализа радиоактивной руды по методу поглощения ее γ -излучения и, как показано нами, может

быть преобразовано в это соотношение путем ряда математических операций над параметрами системы уравнений. Однако все величины в правой части общего решения системы уравнений получаются непосредственно из опыта, тогда как при использовании соотношения Ботэ входящие в него величины необходимо предварительно определять путем соответствующих математических операций над опытными данными.

В приложении (таблицы I, II) показано, что предложенный в работе метод, давая те же самые результаты, что и метод Ботэ, значительно упрощает обработку опытных данных.

III.

В третьей главе описано несколько серий опытов с поглощением β -излучения двукомпонентных малоактивных смесей и приведен анализ полученных результатов.

В § 1 этой главы описана серия опытов с поглощением алюминиевыми фильтрами β -излучения тонких (до 1 мг/см²) образцов изотопов UХ₂, RaE и их смеси, в которых практически отсутствует явление самопоглощения их β -излучения. Активность исследуемого тонкого образца смеси была равной $4,23 \cdot 10^{-10}$ кюри. Опыты проводились в такой последовательности. Сначала строились кривые зависимости $\frac{N}{N_0}$ от толщины алюминиевого фильтра. Аналогичная кривая строилась для образца смеси UХ₂ и RaE. Для анализа β -излучения образца смеси использованы точки кривых поглощения, построенные для UХ₂, RaE и их смеси, которые соответствовали одной и той же толщине фильтра. На основании анализа результатов этой серии опытов установлено, что состав β -излучения тонких образцов двукомпонентной малоактивной смеси изотопов, порядок активности которых не ниже 10^{-10} кюри, можно определить методом его поглощения. Ошибка в оценке содержания отдельных компонентов в этом случае обуславливалась в первую очередь статистическими законами счета и была равной около 4%.

В § 2 описана серия опытов с поглощением алюминиевыми фильтрами β -излучения толстых образцов смеси изотопов UХ₂ и Ra, UХ₂ и K⁴⁰, Rb⁸⁶ и P³². Вопросу анализа β -излучения толстых образцов в работе уделено главное внимание. Это объясняется тем, что в методе меченых атомов так называемые радиоактивные пробы, как правило, представляют собой толстые образцы с активностью порядка 10^{-9} — 10^{10} кюри.

Показано, что в использовании толстых образцов, для опреде-

ления активности отдельных изотопов к разделенному β -излучению, наряду с другими необходимо вносить поправку на поглощение этого излучения самим образцом. В работе рассмотрено несколько методов определения коэффициентов самопоглощения и показано, что в наших опытах, которые проводились с препаратами одинаковой удельной активности, для определения этих коэффициентов наиболее целесообразно было использовать графическую зависимость действительной и измеренной активности от толщины образцов. Именно таким методом в работе определены коэффициенты самопоглощения использованных изотопов и построены графики зависимости этих коэффициентов от толщины слоя (в $\text{мг}/\text{см}^2$) препарата образца.

Толстые образцы Ux_2 , RaE и их смеси изготавливались из препарата, представляющего собой кварцевый песок, в который в виде раствора солей известной концентрации равномерно вносились радиоактивные изотопы. Толщина таких образцов определялась максимальным пробегом электронов β -спектра Ux_2 в кварцевом песке. Активность исследованного нами образца смеси была равной $5,58 \cdot 10^{10}$ кюри. Окончательное значение измеренной активности вычислялось из полученных данных путем внесения к результатам анализа поправок на коэффициент использования β -излучения, на коэффициент его самопоглощения, на поглощение β -излучения слюдяным окошком торцовой трубки, бумагой, слоем воздуха, которые находились между препаратом образца и окошком трубки, и оказалось равным $(5,56 \pm 0,4) \cdot 10^{10}$ кюри.

Препарат для толстых образцов смеси Ux_2 и K^{40} изготавливался путем равномерного смачивания соли KCl раствором соли $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ известной концентрации и последующего полного высушивания такой смеси. Активность исследованного толстого образца смеси Ux_2 и K^{40} была равной $4,56 \cdot 10^{10}$ кюри. Для учета поправки на поглощение β -излучения K^{40} слюдяным окошком, бумагой и слоем воздуха, размещенными между слюдяным окошком и препаратом, находился массовый коэффициент поглощения этого излучения. Он определялся аналитическим и графическим способами и был равен $10,96 \text{ см}^2/\text{г}$.

Образцы искусственных изотопов Rb^{86} и P^{32} и их смеси изготавливались также путем внесения растворов солей этих изотопов, с известной на данное число концентрацией в кварцевый песок. Активность исследованного образца смеси Rb^{86} и P^{32} была равной $1,87 \cdot 10^{10}$ кюри. В отличие от предыдущих, изотопы Rb^{86} и P^{32} характеризуются незначительным различием между максимальными энергиями E_m их β -спектров ($1,72$ и $1,82 \text{ Мев}$) и между

коэффициентами поглощения μ их β -излучения (8,8 и 8,9 см²/г.). Исследование этих образцов показало, что даже такие незначительные отличия достаточны для того, чтобы по ним с практически достаточной точностью провести анализ β -излучения смеси изотопов. Пересечения кривых поглощения β -излучения Rb⁸⁶ и P³² объяснено тем, что Rb⁸⁶ испускает β -излучение двух спектров с максимальными энергиями E_m равными 0,716 и 1,82 МеВ. Показано, что точка пересечения кривых поглощения β -излучения Rb⁸⁶, P³² и их смеси непригодна для анализа. В некоторой мере занижена точность результатов анализа будет также и на участке, который лежит в окрестности точки пересечения трех кривых поглощения β -излучения.

На основании всех опытов с поглощением β -излучения толстых образцов смеси изотопов сделан вывод, что метод поглощения с практически достаточной точностью дает возможность также определять состав β -излучения двухкомпонентной малоактивной смеси изотопов, изготовленной в виде толстых образцов, активность которых имеет порядок не ниже 10^{-10} кюри. Ошибка в определении содержания отдельных компонентов в этой серии опытов не превышала 8—10%.

* * *

В § 3 описано серию опытов с самопоглощением β -излучения толстых образцов смеси изотопов UX₂ и RaE, UX₂ и K⁴⁰, Rb⁸⁶ и P³², которые были уже исследованы в опытах с поглощением их β -излучения алюминиевыми фильтрами. Анализ β -излучения проводился на основании зависимости его интенсивности от увеличения в образцах толщины слоя препарата одинаковой удельной активности. В этом случае для анализа β -излучения смеси изотопов строились экспериментальные кривые, которые характеризуют законы возрастания интенсивности β -излучения образцов отдельных изотопов и их смеси. Показано, что и в этом случае обработка опытных данных может быть произведена предложенным в работе методом, который сводится к решению системы двух линейных алгебраических уравнений.

На основании результатов опытов с самопоглощением сделан вывод, что состав двухкомпонентного β -излучения толстых образцов, изготовленных из препарата с одинаковой удельной активностью, можно определить по законам его самопоглощения. Показано, что процесс выполнения анализа методом самопоглощения значительно проще метода анализа по законам поглощения, но точность результатов, оставаясь практически достаточной, оказывается меньшей. Показано также, что наибольшая точность

анализа методом самопоглощения достигается в прямолинейной области зависимости интенсивности β -излучения от толщины образца.

Результаты опытов, проведенных с толстыми образцами Rb^{86} и Rn^{223} , показали, что методы поглощения и самопоглощения дают возможность также проводить анализ β -излучения смеси двух изотопов с небольшим различием между максимальными энергиями их β -спектров.

В § 4 на примере опытов с излучением Sr^{89} рассмотрено частный случай вопроса анализа радиоактивной смеси по ее β -излучению, а именно, показано, что методом поглощения можно выявить радиоактивные примеси в отдельных изотопах с β -излучением, которые используются в методе радиоактивных изотопов, показано, что для этой цели достаточно сравнить кривую поглощения β -излучения исследуемого изотопа, построенную на основе табличного значения коэффициента поглощения μ , с экспериментальной кривой.

Так для изучения закона поглощения излучения исследуемого изотопа Sr^{89} , в котором могла оказаться примесь изотопа Sr^{90} и его продукта распада Y^{90} , дающего жесткое γ -излучение, была построена и исследована начальная часть экспериментальной кривой поглощения этого излучения, а для определения максимальной энергии β -излучения—конечная часть этой кривой. На основании этих исследований было установлено, что все β -излучение принадлежало Sr^{89} . Было также установлено присутствие в изотопе Sr^{89} небольшого количества примеси изотопа Sr^{85} , который испускает γ -излучение.

* * *

В заключении диссертации даются краткие выводы по всем трем главам, которые показывают, что состав β -излучения двухкомпонентной малоактивной смеси изотопов с практически достаточной точностью можно определить методами поглощения и самопоглощения этого излучения.

В заключении указывается также, что результаты проведенных опытов могут быть использованы в научных исследованиях и в практических работах, в которых применяется одновременно два и больше изотопов с β -излучением. Отмечается также назревшая необходимость разработки простых физических методов анализа малоактивной три- и больше компонентной смеси изотопов с β -излучением.

