

ЦРНОГОРСКА АКАДЕМИЈА НАУКА И УМЈЕТНОСТИ
ГЛАСНИК ОДЈЕЉЕЊА ПРИРОДНИХ НАУКА, 6, 1988.

ЧЕРНОГОРСКАЈА АКАДЕМИЈА НАУК И ИСКУССТВ
ГЛАСНИК ОДДЕЛЕНИЯ ЕСТЕСТВЕННЫХ НАУК, 6, 1988.

THE MONTENEGRIN ACADEMY OF SCIENCES AND ARTS
GLASNIK OF THE SECTION OF NATURAL SCIENCES, 6, 1988.

UDK 539.183.2

S. JOVANOVIĆ*
P. VUKOTIĆ*

**PRIKAZ IZOTOPA KOJI SU OD ZNAČAJA U NEUTRONSKOJ
AKTIVACIONOJ ANALIZI, SA ASPEKTA UTICAJA
NESAVRŠENOSTI EPITERMALNOG NEUTRONSKOG
FLUKSA NA REZULTAT ANALIZE**

**A SURVEY OF THE ISOTOPES WHICH ARE OF INTEREST
IN NEUTRON ACTIVATION ANALYSIS, ACCORDING TO THE
IMPACT OF THE EPITHERMAL NEUTRON FLUX
NONIDEALITY ON THE ANALYTICAL RESULT**

IZVOD

Prilikom primjene monokomparatorskih metoda neutronske aktivacione analize (npr. k₀) neophodno je voditi računa o »nesavršenosti« spektra epitermalnih neutrona. U radu je dat prikaz uticaja ove nesavršenosti na rezultat analize, kao i praktična tabela za procjenu ovog uticaja na 126 izotopa koji su od značaja u neutronske aktivacione analizi.

ABSTRACT

When applying a monocomparator method of neutron activation analysis (e. g. k₀), the epithermal spectrum »nonideality« should be taken into account. A survey of the impact of this nonideality on the analytical result is given, as well as a user oriented table to evaluate this impact for 126 isotopes which are of interest in neutron activation analysis.

* Institut za matematiku i fiziku, Univerzitet »Veljko Vlahović«, Titograd.

UVOD

U teoriji termalnog nuklearnog reaktora se obično pretpostavlja da je fluks epitermalnih neutrona obrnuto proporcionalan energiji neutrona /1/:

$$\varphi'_e(E) = \frac{\varnothing_e}{E} \quad (1)$$

gdje je konstanta \varnothing_e tzv. »epitermalni fluks«. Relacija (1) izvedena je iz pojednostavljenog modela procesa moderacije: homogeni, beskonačni medijum, homogen raspored goriva u moderatoru, zanemarena apsorpcija, neelastično i anizotropno elastično rasijanje neutrona itd. Stvarni uslovi moderacije u reaktoru odstupaju, u manjoj ili većoj mjeri, od navedenih, pa se epitermalni fluks može tačnije opisati semiempirijskom relacijom /2,3/:

$$\varphi'_e(E) = \frac{\varnothing_e}{E^{1+\alpha}} (1\text{eV})^\alpha \quad (2)$$

α je parametar koji karakteriše poziciju u reaktoru i moguće ga je eksperimentalno odrediti /4,5/. Iz (1) i (2) vidimo da α predstavlja mjeru odstupanja stvarnog epitermalnog fluksa od idealizovanog. α može imati i pozitivne i negativne vrijednosti; na primjer, reaktor THETIS (lakovodni, sa grafitnim jezgrom i reflektorom, 250 kW) Instituta za nuklearne nauke u Gentu, Belgija, ima izuzetno širok raspon α u svojim 17 kanala za ozračivanje: od -0.028 do $+0.110$ /6/.

Inače, može se pokazati da $1/E^{1+\alpha}$ aproksimacija zadovoljava sa stanovišta pouzdanosti NAA /15/.

UTICAJ NESAVRŠENOSTI EPITERMALNOG FLUKSA NA REZULTAT NEUTRONSKE AKTIVACIONE ANALIZE

Posljednjih desetak godina u porastu je upotreba monokomparsatorskih metoda neutronske aktivacione analize (NAA) /7/. Zajedničko je za ove metode da se pri izračunavanju koncentracije (ρ) nekog elementa u uzorku javlja kao faktor proporcionalnosti izraz $(f+Q^*)/(f+Q_e)$ /8/. Ovdje je f odnos termalnog prema epitermalnom fluksu ($f=\varnothing_t/\varnothing_e$), a Q_e odnos rezonantnog integrala prema presjeku za radijacioni zavrt (n, γ) na 2200 m/s ($Q_e=I_e/\delta_e$) onog izotopa preko kojeg se određuje koncentracija elementa u uzorku. Znak * se odnosi na monitor fluksa kojeg ozračavamo zajedno sa uzorkom.

Rezonantni integral nekog izotopa se definiše za idealni epitermalni spektar:

$$I_0 = \int_{E_{cd}}^{\infty} \sigma(E) \frac{1}{E} dE \quad (3)$$

gdje je $\sigma(E)$ energetska funkcija presjeka za radijacioni zahvat (n, γ), a E_{cd} granična energija kadmijuma (= 0.55 eV). Ovako definisane i u idealnim uslovima određene vrijednosti rezonantnih integrala nalazimo u literaturi.

Uzimajući u obzir »nesavršenost« ($\alpha \neq 0$) epitermalnog fluksa u poziciji u kojoj ozračavamo uzorak, stvarni rezonantni integral biće zavisian od α :

$$I_0(\alpha) = \int_{E_{cd}}^{\infty} \sigma(E) \frac{(1eV)^\alpha}{E^{1+\alpha}} dE \quad (4)$$

Uvođenjem pojma efektivne rezonantne neregije (\overline{E}_r) /9,10/ omogućena je konverzija $I_0 \rightarrow I_0(\alpha)$ i time upotreba literaturnih I_0 vrijednosti u realnim uslovima:

$$I_0(\alpha) = \left[\frac{I_0 - 0.429 \sigma_0}{\overline{E}_r^\alpha} + \frac{0.429 \sigma_0}{(2\alpha + 1) E_{cd}^\alpha} \right] (1eV)^\alpha \quad (5)$$

\overline{E}_r je karakteristika izotopa i može se naći u ref. /11/, a eventualno i eksperimentalno odrediti /12, 13/.

Iz prethodno izloženog je jasno da se zanemarivanjem nesavršenosti epitermalnog fluksa unosi greška u rezultat NAA. Ako sa ρ' označimo koncentraciju dobijenu ne uzimajući α u obzir, a sa ρ koncentraciju sa urađenom korekcijom [relacija (5)], onda zanemarivanjem α pravimo grešku:

$$s = \left| \frac{\rho - \rho'}{\rho} \right| \cdot 100 = \left| 1 - \frac{f + Q_0^*}{f + Q_0^*(\alpha)} \cdot \frac{f + Q_0(\alpha)}{f + Q_0} \right| \cdot 100 \quad (6)$$

Vidimo da greška zavisi od uslova ozračivanja (f, α) i od karakteristika samog izotopa (Q_0, \overline{E}_r). Takođe je bitno da li se uzorak ozračava sa ili bez kadmijumskog filtera. U slučaju ozračivanja sa kadmijumskim filterom (epikadmijumska neutronska aktivaciona analiza, ENAA), filter uklanja termalne neutrone (čije su energije ispod 0,55 eV), pa je $f=0$. Detaljna analiza greške za 126 izotopa koji su

od interesa u NAA i za ekstremne uslove ozračivanja, data je u ref. /14/.

Za date uslove ozračivanja, greška uglavnom raste sa porastom faktora Q_0 , pa je izotope moguće podijeliti u tri grupe sa arbitrarnim granicama:

- niske vrijednosti Q_0 ($Q_0 < 1$)
- srednje vrijednosti Q_0 ($1 < Q_0 < 10$)
- visoke vrijednosti Q_0 ($Q_0 > 10$).

U Tabeli 1. dati su primjeri greške za izotope ^{51}Cr , ^{160}Gd i ^{96}Ru , kao predstavnike pomenute tri grupe. Razmatrano je 6 kanala za ozračivanje reaktora THETIS sa veoma velikim rasponom vrijednosti f i α .

Treba napomenuti da se ENAA ne praktikuje za izotope sa niskim Q_0 -vrijednostima (zbog slabe epitermalne aktivacije), a rijetko se koristi i za izotope sa srednjim Q_0 .

Tabela 2. daje prikaz maksimalnih grešaka koje se mogu očekivati za pojedine izotope u već pomenutom širokom opsegu f i α vrijednosti ($f = 15 \div 156$, $\alpha = -0.028 \div 0.110$, reaktor THETIS). Ovim se dobija predstava o tome koliko su NAA i ENAA pojedinog izotopa osjetljive na nesavršenost epitermalnog spektra.

ZAKLJUČAK

Praktični značaj ovog rada, čiji su najvažniji rezultati sažeti u Tabeli 2, je u tome što istraživač koji primjenjuje monokomparatorsku metodu neutronske aktivacione analize može, za svaki izotop posebno, procijeniti uticaj nesavršenosti epitermalnog spektra na rezultat analize. Iz tabele se vidi da za određeni broj izotopa korekcija nije neophodna. Ako je, s obzirom na grešku koju dozvoljava cilj analize, potrebna korekcija, ovo podrazumijeva eksperimentalno određivanje parametra α i odgovarajući proračun $I_0(\alpha)$ i ρ .



Projekat iz kojeg je proistekao ovaj rad finansiran je od strane SIZ-a za naučne djelatnosti SR Crne Gore. Autori izražavaju zahvalnost na pomoći.

Izotop	THETIS Kanal /6/		17	3	5	6	7	8	Tip analize
	Q ₀	\bar{E}_r (eV)	α	f					
⁵¹ Cr	0,53	7530	2,17	0,91	2,23	2,30	1,58	1,51	NAA ENAA
			ne praktikuje se						
¹⁶⁰ Gd	9,45	480	4,39	1,37	2,60	2,15	1,31	1,15	NAA ENAA
			12,63	6,14	19,64	29,62	33,01	36,73	
⁹⁶ Ru	26,50	776	10,12	3,88	9,06	9,10	6,36	5,90	NAA ENAA
			14,55	7,01	22,23	33,33	37,05	41,13	

Tabela 1. Greška analize (s) u slučaju zanemarivanja nesavršenosti epitermalnog fluksa u nekoliko kanala za ozračivanje reaktora THETIS (Gent, Belgija), za izotope ⁵¹Cr, ¹⁶⁰Gd i ⁹⁶Ru. Fluks monitor:

$$^{197}\text{Au} (Q_0^* = 15,7; \bar{E}_r^* = 5,65 \text{ eV}).$$

Tabela 2. Maksimalne greške koje se mogu očekivati u rezultatu NAA i ENAA usljed zanemarivanja nesavršenosti epitermalnog fluksa, za 126 analitički interesantnih izotopa. Razmatrani su ekstremni uslovi ozračivanja, navedeni u Tabeli 1; fluks monitor: ¹⁹⁷Au; * = ENAA se ne praktikuje.

izotop	Q ₀	\bar{E}_r (eV)	s (%)	
			ρ, \max NAA	ENAA
¹⁸ O	5,44	1140000	9,0	68
¹⁹ F	2,35	44700	1,4	50
²³ Na	0,59	3380	2,3	*
²⁶ Mg	0,68	257000	2,2	*
²⁷ Al	0,74	11800	2,1	*
³⁰ Si	6,64	2280	4,4	45
³¹ P	0,49	38500	2,3	*
³⁷ Cl	0,69	13700	2,2	*
⁴⁰ Ar	0,62	31000	2,2	*
⁴¹ K	0,97	2960	2,0	*
⁴⁸ Ca	0,45	1330000	2,4	*
⁴⁵ Sc	0,45	5130	2,4	*
⁵⁰ Ti	0,68	63200	2,2	*
⁵¹ V	0,55	7230	2,3	*
⁵¹ Cr	0,53	468	2,3	*
⁵⁵ Mn	1,05	7530	2,0	20

izotop	Q ₀	\overline{E}_r (eV)	s ρ, max (%)	
			NAA	ENAA
⁵⁸ Fe	1,30	637	1,9	25
⁵⁹ Co	2,02	136	1,6	22
⁶⁴ Ni	0,64	14200	2,2	*
⁶³ Cu	1,14	1040	1,9	25
⁶⁵ Cu	1,06	766	2,0	23
⁶⁴ Zn	1,96	913	1,5	32
⁶⁸ Zn	3,82	590	0,81	35
⁶⁹ Ga	9,29	201	3,3	31
⁷¹ Ga	6,64	154	1,9	28
⁷⁴ Ge	1,96	3540	1,3	38
⁷⁶ Ge	12,0	583	5,8	38
⁷⁵ As	14,0	106	4,0	27
⁷⁴ Se	10,9	29,4	1,5	16
⁷⁶ Se	0,50	577	2,3	*
⁷⁸ Se	10,7	501	5,0	37
⁸⁰ Se	3,28	2940	1,4	43
⁸² Se	0,90	8540	2,0	*
⁷⁹ Br	11,5	69,3	2,7	23
⁸¹ Br	19,3	152	5,7	30
⁸⁵ Br	11,3	1250	6,5	43
⁸⁷ Br	23,3	364	8,0	36
⁸⁴ Sr	12,2	469	5,5	37
⁸⁶ Sr	4,6	795	1,9	38
⁸⁹ Y	0,78	4300	2,1	20
⁹⁴ Zr	5,88	6260	4,7	49
⁹⁶ Zr	282	338	29	36
⁹³ Nb	7,39	574	3,5	37
⁹⁸ Mo	93,1	151	12	30
¹⁰⁰ Mo	19,3	312	7,0	35
⁹⁶ Ru	26,5	776	10	41
¹⁰² Ru	3,63	181	0,87	37
¹⁰⁴ Ru	12,8	495	5,8	37
¹⁰³ Rh	7,59	1,45	2,1	15
¹⁰⁶ Pd	18,8	282	6,7	34
¹⁰⁸ Pd	28,8	39,7	5,2	19
¹¹⁶ Pd	13,7	950	7,1	42
¹⁰⁷ Ag	2,66	38,5	1,6	15
¹⁰⁹ Ag	16,4	6,08	0,19	0,79
¹⁰⁸ Cd	9,54	243	3,6	32
¹¹⁰ Cd	2,19	125	1,6	22
¹¹⁴ Cd	68,5	207	15	33
¹¹⁶ Cd	17,7	726	8,0	40
¹¹³ In	26,9	6,41	1,5	1,4
¹¹⁵ In	16,3	1,56	1,8	15
¹¹² Sn	49,1	107	11	27
¹¹⁶ Sn	91,1	128	17	29
¹²² Sn	4,48	213	0,91	29
¹²⁴ Sn	59,7	29,4	8,9	17
¹²¹ Sb	32,4	13,1	3,6	8,8
¹²³ Sb	30,1	28,2	4,8	16
¹²² Te	23,4	93,3	5,5	26
¹²⁴ Te	0,88	1210	2,1	*
¹²⁶ Te	7,69	285	3,0	33

izotop	Q ₀	\overline{E}_r (eV)	s ρ, max (%)	
			NAA	ENAA
¹²⁸ Te	7,72	738	4,0	39
¹³⁰ Te	1,59	2950	1,6	35
¹²⁷ I	24,8	57,6	5,0	22
¹³³ Cs	18,4	29,6	2,8	16
¹³⁰ Ba	17,7	69,9	4,1	24
¹³⁴ Ba	11,7	115	3,4	27
¹³⁶ Ba	7,93	545	3,8	37
¹³⁸ Ba	0,80	15700	2,1	•
¹³⁹ La	1,24	76,0	2,0	14
¹⁴⁰ Ce	0,82	7200	2,1	•
¹⁴² Ce	1,19	1540	1,9	27
¹⁴¹ Pr	1,53	296	1,8	24
¹⁴⁶ Nd	2,29	874	1,3	34
¹⁴⁸ Nd	5,60	236	1,7	31
¹⁵⁰ Nd	11,7	173	4,0	30
¹⁵² Sm	14,4	8,53	0,46	4,3
¹⁵⁴ Sm	3,81	142	0,84	26
¹⁵³ Eu	5,67	5,80	1,44	0,03
¹⁵⁸ Gd	32,0	48,2	6,1	21
¹⁶⁰ Gd	9,45	480	4,4	37
¹⁵⁹ Tb	17,9	18,1	2,0	12
¹⁶⁴ Dy	0,13	224	2,7	•
¹⁶⁵ Ho	10,9	12,3	0,47	7,8
¹⁶⁶ Er	5,01	59,3	0,63	20
¹⁷⁰ Er	7,59	129	2,1	27
¹⁶⁹ Tm	16,4	4,80	0,18	1,75
¹⁶⁸ Yb	12,2	0,61	3,0	27
¹⁷⁴ Yb	0,40	602	2,4	•
¹⁷⁶ Yb	1,68	412	1,7	27
¹⁷⁵ Lu	26,4	16,1	3,2	11
¹⁷⁴ Hf	0,78	29,6	2,3	•
¹⁷⁷ Hf	19,2	2,08	1,3	11
¹⁷⁸ Hf	23,2	8,01	1,5	3,7
¹⁷⁹ Hf	15,4	16,2	1,5	11
¹⁸⁰ Hf	2,52	115	1,5	23
¹⁸¹ Ta	33,3	10,4	3,3	6,5
¹⁸² W	40,5	9,20	3,8	5,3
¹⁸⁶ W	13,7	20,5	1,6	13
¹⁸⁵ Re	15,4	3,4	0,74	5,6
¹⁸⁷ Re	3,85	41,1	1,2	17
¹⁸⁹ Os	21,4	12,3	1,9	8,1
¹⁹⁰ Os	2,29	114	1,6	22
¹⁹² Os	2,30	89,7	1,6	20
¹⁹³ Ir	12,2	2,21	1,5	11
¹⁹⁰ Pt	0,47	27,6	2,4	•
¹⁹⁶ Pt	7,08	291	2,7	33
¹⁹⁸ Pt	17,0	106	4,6	27
¹⁹⁶ Hg	0,15	93,5	2,6	•
¹⁹⁸ Hg	35,9	39,3	6,5	19
²⁰² Hg	0,86	1960	2,1	•
²⁰³ Tl	3,77	276	0,70	30
²⁰⁵ Tl	5,70	2960	3,9	46

izotop	Q_0	\overline{E}_T (eV)	s (%)	
			ρ, \max NAA	ENAA
^{206}Pb	2,84	10500	1,5	47
^{208}Pb	4,08	14500	5,0	60
^{209}Bi	5,62	1210	3,0	41
^{232}Th	11,4	54,4	2,4	21
^{238}U	103	16,9	10	11

LITERATURA

- /1/ A. M. Weinberg, E. P. Wigner, The Physical Theory of Neutron Chain Reactors, The Univ. of Chicago Press, Chicago 1958.
- /2/ T. B. Ryves, E. B. Paul, J. Nucl. Energy 22 (1968) 759.
- /3/ T. B. Ryves, Metrologia 5 (1969) 119.
- /4/ F. De Corte, L. Moens, K. Sordo-El Hammami, A. Simonits, J. Hoste, J. Radioanal. Chem. 52 (1979) 305.
- /5/ F. De Corte, K. Sordo-El Hammami, L. Moens, A. Simonits, A. De Wispelaere, J. Hoste, J. Radioanal. Chem. 62 (1981) 209.
- /6/ F. De Corte, S. Jovanović, A. Simonits, L. Moens, J. Hoste, Kernenergie, Kerntechnik, Suppl. to Vol. 44 (1984) 641.
- /7/ F. De Corte, The k_0 -standardization Method, a Move to the Optimization of Neutron Activation Analysis, habilitaciona teza, Univ. Gent, Belgija 1987.
- /8/ A. Simonits, L. Moens, F. De Corte, A. De Wispelaere, A. Elek, J. Hoste, J. Radioanal. Chem. 60 (1980) 461.
- /9/ L. Moens, F. De Corte, A. Simonits, A. De Wispelaere, J. Hoste, J. Radioanal. Chem. 52 (1979) 379.
- /10/ S. Jovanović, F. De Corte, L. Moens, A. Simonits, J. Hoste, J. Radioanal. Nucl. Chem., Articles 82 (1984) 379.
- /11/ S. Jovanović, F. De Corte, A. Simonits, L. Moens, P. Vukotić, J. Hoste, J. Radioanal. Nucl. Chem., Articles 113 (1987) 177.
- /12/ A. Simonits, S. Jovanović, F. De Corte, L. Moens, J. Hoste, J. Radioanal. Nucl. Chem., Articles 82 (1984) 169.
- /13/ S. Jovanović, F. De Corte, A. Simonits, J. Hoste, J. Radioanal. Nucl. Chem., Articles 92 (1985) 399.
- /14/ S. Jovanović, The Effective Resonance Energy as a New Parameter in (n, γ) Activation Analysis with Reactor Neutrons, doktorska teza, Univ. Gent, Belgija 1984.
- /15/ F. De Corte, L. Moens, S. Jovanović, A. Simonits, A. De Wispelaere, J. Radioanal. Nucl. Chem., Articles, 102 (1986) 37.

A SURVEY OF THE ISOTOPES WHICH ARE OF INTEREST IN NEUTRON
ACTIVATION ANALYSIS, ACCORDING TO THE IMPACT OF THE
EPITHERMAL NEUTRON FLUX NONIDEALITY ON THE ANALYTICAL
RESULT

S. JOVANOVIĆ and P. VUKOTIĆ

Summary

The epithermal neutron flux in a thermal nuclear reactor is found to be well described by a $E^{1+\alpha}$ representation (E = neutron energy). Parameter α , characterising the irradiation site, is a measure of the deviation from the idealised $1/E$ law. The impact of this deviation on the analytical result when applying a single comparator (e. g. k_0) method of NAA is discussed. Three groups of the isotopes can be distinguished in this respect: with low Q_0 ($= I_0/\delta_0$) factor, e. g. $Q_0 < 1$, being practically not affected by the epithermal nonideality; with medium Q_0 , e. g. $1 < Q_0 < 10$ for which care should be taken only when applying epithermal analysis; with high Q_0 , e. g. $Q_0 > 10$, which are the most sensitive to this impact. A user oriented table is meant for the analyst's easy orientation when judging about this problem.

