

АНАЛИЗ СОСТАВА W-Re СПЛАВА ПО РЕНТГЕНОВСКОМУ ИЗЛУЧЕНИЮ К-СЕРИИ И МГНОВЕННОМУ γ -ИЗЛУЧЕНИЮ ИЗ ЯДЕРНЫХ РЕАКЦИЙ

В.В.Левенец, А.А.Щур, А.П.Омельник, В.А.Запорожченко, Н.П.Усиков, В.А.Диордица
ИФТТМТ ННЦ "Харьковский физико-технический институт", 310108, Харьков, Академическая, 1 Украина, тел.38-0572-40-4222, e-mail levenets@kipt.kharkov.ua

Для определения содержания основных компонентов сплава на основе вольфрама и рения и фтора, присутствующего в виде примеси была разработана методика, использующая возбуждаемое протонами характеристическое рентгеновское излучение (х.р.и.) К-серии и мгновенное γ -излучение из ядерных реакций, вызываемых протонами. Рассмотрены экспериментальные условия измерений. Приведен способ определения концентраций, позволяющий повысить точность анализа, избавиться от погрешности, вносимой нестабильностью тока пучка.

1. Определение W и Re

Обычно элементы с порядковыми номерами свыше 50 при анализе методом ХРИ определяют по х.р.и. L-серии поскольку выход излучения К-серии при фиксированной энергии протонов на 2-3 порядка ниже. Однако, при анализе образцов сплавов вольфрама с рением анализируемый объект, содержит элементы с близкими значениями порядковых номеров, и возникают сложности с разделением близких по энергии пиков L-серии в рентгеновском спектре. При анализе по К-серии этой проблемы не существует. Кроме того, заметно увеличивается эффективная толщина анализируемого слоя, так как мягкое излучение L-серии существенно поглощается в объеме образца. При определении оптимального режима измерений было установлено, что анализ целесообразно проводить при токе пучка протонов 100-200 нА и энергиях 2.5-3.0 МэВ. Глубина анализируемого слоя для использовавшихся геометрических условий составляла 14-18 мкм. Для подавления низкоэнергетического фона и интенсивного х.р.и. L-серии вольфрама и рения, создающих помехи работе спектрометрического тракта применялась поглощающая фольга из тантала толщиной 60 мкм. Загрузка спектрометрического тракта не превышала 200 имп./с, что позволило не вносить поправок на "мертвое время". Х.р.и. регистрировалось полупроводниковым Ge(Hr)-детектором. После усиления и преобразования сигнала в многоканальном амплитудном анализаторе формировались спектры рентгеновского излучения. Типичный вид спектра рентгеновского излучения показан на рис.1. Как видно из рисунка, наиболее интенсивная из линий К-серии вольфрама - $K_{\alpha 1}$ налагается на $K_{\alpha 2}$ линию рения. Поэтому для определения концентрации вольфрама использовалась линия х.р.и. $K_{\alpha 2}$ с энергией 57.97 кэВ, а рений определялся по линии $K_{\alpha 1}$ с энергией 61.13 кэВ.

2. Анализ фтора

Для анализа состава вещества методом ХРИ применяют протоны с энергией 1.0-3.0 МэВ. При использовании протонов с энергией в этом диапазоне, для определения фтора может быть использованы γ -кванты с энергиями 6.13, 6.92 и 7.12 МэВ, образующиеся в реакции $^{19}\text{F}(p,\alpha\gamma)^{16}\text{O}$, и γ -кванты с энергиями 110, 197 и 1236 кэВ из

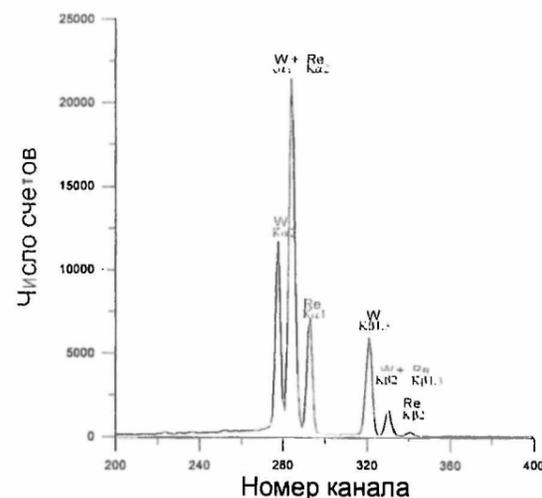


Рис.1. Спектр рентгеновского излучения W-Re образца.

реакции $^{19}\text{F}(p,p'\gamma)^{19}\text{F}$. Сечение реакции $^{19}\text{F}(p,\alpha\gamma)^{16}\text{O}$ в диапазоне энергий протонов 0.8-1.4 МэВ имеет три узких, сильно выраженных резонанса при $E_p=0.873$ МэВ, $E_p=1.347$ МэВ и $E_p=1.374$ МэВ, и относительно плавно изменяется при энергиях протонов выше 2.0 МэВ [1]. Такой характер зависимости сечения от энергии позволяет осуществлять измерение профиля концентрации фтора по глубине исследуемого образца или определять концентрацию фтора в тонких поверхностных слоях. При использовании протонов с энергией 873 кэВ 80 % γ -квантов, порождаемых в реакции $^{19}\text{F}(p,\alpha\gamma)^{16}\text{O}$ испускается из слоя вольфрама толщиной 0.03 мкм. Из-за отсутствия, при используемых энергиях протонов, интерферирующих линий γ -излучения фтор может быть определен по этой реакции с высокой точностью даже при низких концентрациях. При определении фтора по реакции $^{19}\text{F}(p,p'\gamma)^{19}\text{F}$ привлекательной является возможность использования γ -квантов с энергиями 110, 197 кэВ. Интенсивные линии низкоэнергетического γ -излучения, испускаемые при облучении ядра атома фтора протонами с энергиями в диапазоне 1-3.5 МэВ, могут регистрироваться детектором из высокочистого германия в одном спектре с аналитическими линиями рентгеновского излучения К-серии

вольфрама и рения. Это позволяет использовать при анализе данного типа объектов один спектрометрический канал, что приводит к упрощению процедуры получения аналитической информации и повышению точности анализа. Последнее обстоятельство определило выбор для определения фтора линий γ -излучения с энергиями 110 и 197 кэВ из реакции $^{184}\text{W}(\text{p},\text{p}')^{19}\text{F}$. На рис.2. приведен спектр γ -излучения образца вольфрам-рениевого сплава.

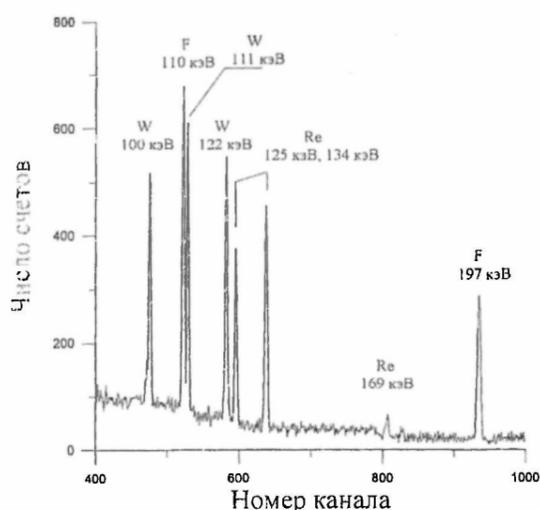


Рис. 2. Спектр γ -излучения образца W-Re сплава.

Линия γ -излучения фтора с энергией 110 кэВ имеет большую интенсивность, но интерферирует с линией вольфрама при энергии 111 кэВ из реакции $^{184}\text{W}(\text{p},\text{p}')^{184}\text{W}$. Напротив, менее интенсивная линия с энергией 197 кэВ в спектре γ -излучения W-Re матрицы находится в благоприятных условиях для определения - на гладком фоне без близкорасположенных пиков. Обе линии могут быть использованы для определения концентраций фтора вплоть до $10^{-4}\%$ масс.

3. Вычисление концентраций

При условии равномерного распределения анализируемого элемента по глубине выход рентгеновских или γ -квантов, испущенных из толстой мишени в расчете на один упавший протон с энергией E_p определяется формулой:

$$Y(E_p) = c * K \int_0^{E_p} \frac{\sigma(E) * e^{-\mu * x(E)}}{S(E)} dE \quad (1)$$

где c - концентрация атомов искомого элемента в веществе мишени; K - коэффициент, учитывающий эффективность и телесный угол детектора; $x(E)$ - толщина слоя вещества мишени, в котором происходит ослабление излучения определяемого элемента; $\sigma(E)$ - сечение возбуждения х.р.и. или образования γ -квантов протонами с энергией E . $S(E)$ - тормозные потери протонов в веществе мишени, μ - коэффициент поглощения рентгеновского или γ -излучения, вычисляемый по правилу Брегга. При заметном отличии в составах

исследуемого образца и образца сравнения или определении концентрации методом фундаментальных параметров, необходимо вычислять интеграл в формуле (1). Однако, при анализе W-Re сплавов отличие в коэффициентах поглощения х.р.и. и тормозных способностях для основных компонентов сплавов невелико и концентрация определяемых элементов может быть определена методом внешнего стандарта - сравнением интенсивностей счета в образце сравнения и анализируемом объекте

$$C_x = C_{ст} \frac{Y_x}{Y_{ст}} \quad (2)$$

где C_x , $C_{ст}$ - концентрация искомого элемента в анализируемом и в стандартном образцах, соответственно; Y_x , $Y_{ст}$ - интенсивность счета в пике х.р.и. или γ -излучения для искомого элемента в анализируемом и в стандартном образцах.

Разработанная методика предназначена для анализа объектов, в которых содержание вольфрама изменялось от 70 до 100 % масс., а содержание рения, соответственно - от 0.1 до 30% масс. Как показывают оценки, выполненные с использованием данных из работ [2,3], различия в коэффициентах поглощения для х.р.и. К-серии рения и вольфрама и тормозных потерях протонов для матриц с граничными значениями концентраций при использовании протонов с энергией 3.0 МэВ незначительны. Учет этих отличий приводит поправкам в величинах выходов х.р.и. менее чем на 0.3%. Для более жесткого, по сравнению с рентгеновским излучением вольфрама и рения, γ -излучения фтора поглощение в объеме исследуемой пробы не существенно. Погрешность, возникающая при определении концентраций по формуле (2), когда пренебрегают отличием численного значения интеграла в выражении (1) для пробы и образца сравнения, не превышает статистической точности выделения пика.

После вычисления суммы счетов и определения концентраций методом внешнего стандарта по формуле (2) было установлено, что основную погрешность в определении концентраций вносит разброс значений числа счетов, для серии последовательных измерений одного и того же объекта. Этот разброс связан в основном с погрешностью в измерении заряда протонов упавших на мишень. Для повышения точности определения концентраций элементов в анализируемых пробах был использован метод вычисления предложенный в работе [4]. Как показано авторами, в случае, когда сумма концентраций определяемых элементов в пробе и образце сравнения составляет 100%, а различие в составе матриц не оказывает существенного влияния на интенсивность аналитических линий, концентрация каждого из них может быть определена по формуле:

$$C_i = \frac{Y_i}{\sum_{j=1}^n Y_j \frac{Y_i^{ст} C_j^{ст}}{Y_j^{ст} C_i^{ст}}} \quad (3)$$

где C_i - концентрация i -того определяемого элемента в анализируемой пробе; Y_i , Y_j - выход х.р.и. или γ -излучения, соответственно, i -того и j -того

элемента из анализируемого объекта. Аналогичные символы с верхним индексом "ст" означают соответствующие величины для стандартного образца. При таком способе вычисления концентраций погрешность привносимая неточным измерением заряда устраняется, поскольку для расчетов используются отношения выходов, зависящие лишь от статистической точности вычисления пика. Погрешность вычисления концентраций определяемых элементов составила: для фтора 15 - 4% отн., при концентрациях 0.0001 - 0.01% масс; для вольфрама - 0.5-0.3% отн., при концентрациях 70 - 99.99% масс; для рения - 15-2% отн., при концентрациях 0.1-30% масс. На основании представленных в работе результатов можно сделать вывод о целесообразности использования характеристического рентгеновского излучения K - серии для определения тяжелых

элементов. Разработанная методика анализа может быть использована с большим эффектом при исследовании объектов, включающих тяжелые элементы с близкими значениями атомных номеров либо таких, в которых анализ по L - серии затруднен из-за наличия мешающих интенсивных линий K - серии.

Список литературы

1. I.Golicheff, M.Loëullet, Ch.Engelmann // Journal of Radioanalytical Chemistry, Vol. 12 (1972) 233-250.
2. B.V.Robouch, A.Cicerchia // Comit. Naz. Ener. Nucl. 55 (1980) 1-99.
3. J.F.Janni // At. Data Nucl. Data Tables 27(1982) 1.
4. О.И.Ехичев, В.В.Левенец, Н.Ф.Северин // А.С. 1137889 СССР G01 N 23/223 Способ ядерно-физического метода анализа элементного состава вещества, 1983 г.

DETERMINATION OF CONTENT OF W-Re ALLOYS USING PROTON INDUCED CHARACTERISTIC X-RAY EMISSION AND PROMPT γ -RAY EMISSION FROM NUCLEAR REACTIONS

V.V.Levenets, A.O.Stchur, O.P.Omelnik, V.A.Zaporozhchenko, M.P.Usikov, V.A.Diorditsa
National Science Center "Kharkiv Institute of Physics & Technology", Kharkiv, Ukraine, tel.38-0572-40-4222
fax 38-0572-35-1688, e-mail levenets@kipt.kharkov.ua

The method was developed for determination of the contents of tungsten, rhenium and fluorine in binary tungsten-rhenium alloys using proton induced characteristic x-ray emission of K-series and prompt γ -ray emission from nuclear reactions. The optimum conditions of measurements were established: protons beam current - 100-200 μ A, particles energy - 2.5-3.0 MeV. The depth of an analyzed layer for used geometrical conditions came to 14-18 μ m. The absorbing tantalum foil was used for suppression of low-energy background and intensive x-ray emission of L - series tungsten and rhenium. Spectra of x-ray emission were registered by semiconductor Ge(Hp) detector. Because of imposing in x-ray spectrum of $K_{\alpha 1}$ line of tungsten and of $K_{\alpha 2}$ line of rhenium, the line $K_{\alpha 2}$ of tungsten at energy of 57.97 keV and the line $K_{\alpha 1}$ of rhenium at energy 61.13 keV for determination of concentration were used. The fluorine content was defined using reaction $^{19}\text{F}(p, p'\gamma)^{19}\text{F}$. For energies of protons in a range 1- 3.5 MeV γ -rays with energies 110, 197 are emitted. The availability of intensive lines of γ -ray in the area of energies up to 200 keV enables to be registered analytical lines of K-series x-ray radiation of a W and Re and low-energy γ -emission of fluorine by a Ge(Hp) detector in one spectrum. That results in simplification of a procedure of receiving of the analytical information and increases accuracy of the analysis. The developed technique is intended for the analysis of objects, in which contents of tungsten is changed from 70 up to 100 % of weights, and contents of rhenium, accordingly - from 0.1 up to 30% of weights. An error of calculation of concentration of determined elements has come to: fluorine 15-4 % rel., with concentration 0.0001 - 0.01% of weights; for tungsten - 0.5-0.3% rel., with concentration 70 - 99.99% of weights; for rhenium - 15-2% rel., with concentration of 0.1-30% of weights. On the basis of results submitted in this work it is possible to make conclusion about an opportunity of application of the characteristic x-ray emission of K - series to determination of heavy elements. The developed technique of the analysis can be used with large effect for research of objects, consisting of heavy elements with close values of atomic numbers or such objects in which analysis on L - series is hindered because of availability of interfering intensive lines of K - series.

3-я международная конференция «Взаимодействие излучений с твердым телом», 6-8 октября 1999 г., Минск, Беларусь
3-d International Conference «Interaction of Radiation with Solids», October 6-8, 1999, Minsk, Belarus



This document has been edited with Infix PDF Editor - free for non-commercial use.

To remove this notice, visit: www.iceni.com/unlock.htm