

(19)



**Евразийское
патентное
ведомство**

(11) **046970**

(13) **B1**

(12) **ОПИСАНИЕ ИЗОБРЕТЕНИЯ К ЕВРАЗИЙСКОМУ ПАТЕНТУ**

(45) Дата публикации и выдачи патента
2024.05.16

(21) Номер заявки
202390765

(22) Дата подачи заявки
2021.09.02

(51) Int. Cl. **G01N 23/221** (2006.01)
G21G 1/12 (2006.01)
G01N 23/2208 (2018.01)

(54) **УСОВЕРШЕНСТВОВАНИЯ В ИЗМЕРЕНИЯХ ГАММА-АКТИВАЦИОННОГО АНАЛИЗА**

(31) **2020903133**

(32) **2020.09.02**

(33) **AU**

(43) **2023.07.03**

(86) **PCT/AU2021/051021**

(87) **WO 2022/047537 2022.03.10**

(71)(73) Заявитель и патентовладелец:
**КРАЙСОС КОРПОРЕЙШН
ЛИМИТЕД (AU)**

(56) **WO-A1-2015089580**

YAGI, M. et al., "A New Internal Reference Method for Activation Analysis and its Application. Determination of Ti, Cr, Ni and Zr in Aluminium Alloys by Means of Photon Activation", Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Articles, Vol. 84/2 (1984) pg 369-380 Abstract, page 371-372, 374-376, 378

WO-A1-1990010859

(72) Изобретатель:
Тикнер Джеймс (AU)

(74) Представитель:
**Гизатуллина Е.М., Угрюмов В.М.,
Строкова О.В., Гизатуллин Ш.Ф.,
Костюшенкова М.Ю., Джермакян Р.В.
(RU)**

(57) Раскрыты способ и система для определения концентрации одного или нескольких целевых элементов в образце с использованием гамма-активационного анализа, включающие: одновременное облучение образца и эталонного материала, содержащего по меньшей мере два эталонных элемента, рентгеновскими лучами, обнаружение дезактивационного гамма-излучения от облученного образца и облученного эталонного материала; определение концентрации единственного или каждого целевого элемента в образце путем корректировки интенсивности обнаруженного дезактивационного гамма-излучения от единственного или каждого целевого элемента, присутствующего в облученном образце, на основании интенсивности обнаруженного дезактивационного гамма-излучения по меньшей мере от двух эталонных элементов, при этом по меньшей мере два эталонных элемента проявляют изменения скорости активации в предварительно определенном диапазоне конечной энергии рентгеновского излучения, которые отличаются друг от друга.

B1

046970

046970

B1

Область техники, к которой относится настоящее изобретение

Настоящее изобретение относится, в общем, к усовершенствованиям измерений гамма-активационного анализа и, в частности, к измерению состава неизвестных образцов с использованием гамма-активационного анализа.

Предшествующий уровень техники настоящего изобретения

Гамма-активационный анализ (ГАА), также известный как фотонный активационный анализ, представляет собой способ определения концентрации определенных целевых элементов в образце. В ГАА используется рентгеновское излучение высокой энергии, создаваемое источником рентгеновского излучения, для облучения образца, как правило, с энергиями в диапазоне от 6 МэВ до 15 МэВ или более. Рентгеновское излучение вызывает изменения в некоторых ядрах целевых элементов, что может привести к образованию радиоизотопов.

После периода облучения образец перемещается от источника рентгеновского излучения к детекторной системе. Индуцированные радиоизотопы в образце распадаются с характеристическим периодом полураспада и могут испускать гамма-излучение с одним или несколькими характеристическими значениями энергии. Подходящая система детектора гамма-излучения подсчитывает гамма-излучение, испускаемое образцом, и измеряет его энергию. Интенсивность гамма-излучения, испускаемого целевым элементом, пропорциональна количеству этого элемента в образце.

Константа пропорциональности, связывающая интенсивность гамма-излучения и массу элемента, зависит от ряда факторов; важно, что в их число входят интенсивность и энергетический спектр рентгеновских лучей, испускаемых источником рентгеновского излучения.

Промышленный гамма-активационный анализ удобно проводить с использованием источника рентгеновского излучения, состоящего из ускорителя электронов, снабженного мишенью тормозного излучения, которая преобразует часть энергии электронов в рентгеновское излучение. Рентгеновское излучение имеет широкий энергетический спектр, вплоть до максимальной энергии электронного пучка, которая называется конечной энергией. Ускоритель электронов часто представляет собой линейный ускоритель (LINAC), причем данная технология находит широкое применение и обладает способностью производить пучки высокой интенсивности. Из соображений стоимости и компактности промышленные в источниках LINAC, как правило, отсутствуют такие средства, как магнитная сепарация, для стабилизации или монохроматизации энергии электронного пучка. Следовательно, такие источники обычно демонстрируют значительные флуктуации интенсивности или энергии электронного луча, которые вызывают соразмерные изменения интенсивности и энергии испускаемого рентгеновского излучения. Такие изменения могут быть вызваны изменениями температуры ускорителя, температуры компонентов источника питания или изменениями напряжения источника электропитания, и их можно рассматривать как фактически случайные.

В публикации WO 2015089580 описан метод анализа золота, который включает одновременное облучение и измерение образца и эталонного материала, содержащего известное количество элемента брома. Авторы изобретения установили, что активация золота и брома тесно связана с изменениями интенсивности или энергии рентгеновского излучения в широком диапазоне энергий. Следовательно, нормирование сигнала активации золота с использованием сигнала активации брома обеспечивает существенное улучшение точности измерения.

В работе Yagi и Masumoto ("Новый метод внутреннего эталона для активационного анализа и его применение", J. Radioanalytical and Nucl. Chem. 1984, 84(2), 369-380) описан способ анализа целевого элемента в неизвестном образце, причем данный способ включает: во-первых, добавление количества второго элемента (эталонного элемента) к неизвестному образцу; во-вторых, облучение неизвестного образца и второго образца, содержащего известные количества как целевого, так и эталонного элементов, при тех же условиях активации; и, в-третьих, вычисление концентрации целевого элемента в неизвестном образце из соотношений интенсивностей гамма-излучения, испускаемых целевым и эталонным элементами из неизвестного и второго образцов, и известных концентраций этих элементов во втором образце. При условии, что условия активации, такие как энергия рентгеновского излучения, не различаются между двумя измерениями, этот подход позволяет точно определить концентрацию целевого элемента в неизвестном образце.

Нейтронно-активационный анализ представляет собой родственный аналитический метод, в котором образование радиоизотопов целевых элементов в образце индуцируется падающим пучком нейтронов; аналогичными являются соображения в отношении поправки на изменения интенсивности или энергии нейтронов, так же, как в методе ГАА. В нейтронно-активационном анализе ранее предлагалось одновременное облучение образца и эталона, в которых содержатся одни и те же целевые элементы. Образец и эталон затем измеряются отдельно, и сравниваются относительные интенсивности гамма-излучения для отдельных элементов, чтобы определить концентрацию каждого целевого элемента в образце по отношению к известной концентрации в эталоне.

Однако для этого подхода требуется, чтобы гамма-излучение одинаковой энергии излучали одни и те же элементы в образце и эталоне. Решения представляют собой измерение образца и эталона с использованием отдельных детекторных систем, последовательное измерение образца и эталона во времени или

использование детекторной системы, способной определять как энергию, так и исходное положение гамма-излучения. Эти соображения увеличивают стоимость или сложность детекторной системы или снижают скорость анализа образцов. Следовательно, такие условия не считаются идеальными для промышленной системы анализа, для которой оказываются желательными простота, низкая стоимость и высокая производительность.

Любое упоминание или обсуждение любого документа, действия или элемента знаний в описании настоящего изобретения присутствует исключительно с целью предоставления контекста для настоящего изобретения. Не предполагается и не утверждается, что какой-либо из этих вопросов или какая-либо их комбинация составляли на дату приоритета часть общеизвестных сведений, или было известно, что они имеют отношение к попытке решить какую-либо проблему, к которой относится описание настоящего изобретения.

Краткое раскрытие настоящего изобретения

Настоящее изобретение основано на одновременном облучении неизвестных образцов и эталонного материала, содержащего два или более эталонных элементов. Среди прочих соображений эталонные элементы выбираются таким образом, чтобы их чувствительность к изменениям энергии рентгеновского излучения отличалась друг от друга. По этим различным откликам может быть реконструирован отклик псевдоэлемента, который отслеживает отклик целевого элемента (элементов) в образце.

В частности, скорость активации одного или нескольких целевых элементов в неизвестном образце оценивается путем одновременного облучения и измерения образца и эталонного материала, содержащего два или более эталонных элемента, что, в свою очередь, позволяет определить подлежащую вычислению концентрацию единственного или каждого целевого элемента.

Соответственно, согласно одному аспекту настоящего изобретения предложен способ определения концентрации одного или нескольких целевых элементов в образце, включающий:

i) одновременное облучение тормозным рентгеновским излучением образца и эталонного материала, содержащего не менее двух эталонных элементов, таким образом, чтобы активированные ядра образцовывались по меньшей мере в некоторых целевых элементах или в каждом из целевых элементов, присутствующих в образце, и для образования активированных ядер в по меньшей мере двух эталонных элементах;

ii) обнаружение дезактивационного гамма-излучения от облученного образца и облученного эталонного материала;

iii) определение интенсивности обнаруженного дезактивационного гамма-излучения от единственного или каждого целевого элемента, присутствующего в облученном образце, и по меньшей мере двух эталонных элементов;

iv) определение концентрации единственного или каждого целевого элемента в образце, включающее корректировку интенсивности обнаруженного дезактивационного гамма-излучения по единственному или каждому целевому элементу, присутствующему в облученном образце, вследствие отклонений в тормозном рентгеновском излучении на основании интенсивности обнаруженного дезактивационного гамма-излучения по меньшей мере от двух эталонных элементов, при этом по меньшей мере два эталонных элемента проявляют изменения скорости активации в предварительно определенном диапазоне конечной энергии рентгеновского излучения, которые отличаются друг от друга.

Согласно одному варианту осуществления по меньшей мере один из эталонных элементов демонстрирует изменение скорости активации в предварительно определенном диапазоне конечной энергии рентгеновского излучения, которое отличается менее чем на 3% от изменения скорости активации единственного или каждого целевого элемента.

Согласно одному варианту осуществления по меньшей мере один из эталонных элементов демонстрирует изменение скорости активации в предварительно определенном диапазоне конечной энергии рентгеновского излучения, которое отличается более чем на 20% от изменения скорости активации единственного или каждого целевого элемента.

Согласно одному варианту осуществления по меньшей мере один из эталонных элементов демонстрирует изменение скорости активации в предварительно определенном диапазоне конечной энергии рентгеновского излучения, которое отличается более чем на 20% от изменения скорости активации другого из эталонных элементов.

Согласно одному варианту осуществления по меньшей мере два из эталонных элементов демонстрируют изменение скорости активации в предварительно определенном диапазоне конечной энергии рентгеновского излучения, которое составляет менее чем изменения скорости активации единственного или каждого целевого элемента.

Согласно одному варианту осуществления по меньшей мере два из эталонных элементов демонстрируют изменение скорости активации в предварительно определенном диапазоне конечной энергии рентгеновского излучения, которое составляет более чем изменения скорости активации единственного или каждого целевого элемента.

Согласно одному варианту осуществления активированные ядра по меньшей мере двух эталонных элементов имеют период полураспада, находящийся в диапазоне от 1 секунды до 10 минут и предпочти-

тельно составляющий менее чем 2 минуты.

Согласно одному варианту осуществления активированные ядра по меньшей мере двух эталонных элементов испускают гамма-излучение одного или нескольких типов с энергией выше 40 кэВ с вероятностью на распад, составляющей 1% или более.

Согласно одному варианту осуществления энергии гамма-излучения, испускаемого активированными ядрами, не препятствуют измерению гамма-излучения, испускаемого одним или каждым целевым элементом.

Согласно одному варианту осуществления энергии гамма-излучения, испускаемого активированными ядрами, не препятствуют измерению гамма-излучения, испускаемого любыми другими элементами, присутствующими в образце.

Согласно одному варианту осуществления целевой элемент и по меньшей мере два эталонных элемента имеют индуцированные рентгеновским излучением реакции активации с пороговой энергией ниже 15 МэВ.

Согласно одному варианту осуществления по меньшей мере два эталонных элемента производят активированные ядра из изотопов с естественным содержанием, составляющим более чем 90%, предпочтительно более чем 99%.

Согласно одному варианту осуществления по меньшей мере два эталонных элемента, если они присутствуют в образце, должны иметь массу в образце, которая составляет менее чем 10%, предпочтительно менее чем 1% массы соответствующего эталонного элемента в эталонном материале.

Согласно одному варианту осуществления определение концентрации единственного целевого элемента или каждого целевого элемента включает следующие стадии:

- a) вычисление скоростей активации с поправкой на время единственного или каждого целевого элемента и по меньшей мере двух эталонных элементов;
- b) определение значения сигнала целевого элемента для единственного или каждого целевого элемента на основе соотношения скорректированной по времени скорости активации единственного или каждого целевого элемента и функции на основе скорректированных по времени скоростей активации опорных элементов;
- c) корректировка ослабления падающих рентгеновских лучей и гамма-излучения каждого целевого элемента в образце путем применения коэффициента ослабления для создания значения сигнала с поправкой на коэффициент ослабления; и
- d) умножение значения сигнала с поправкой на коэффициент затухания на константу нормирования.

Согласно одному варианту осуществления коэффициент ослабления определяется экспериментально путем измерения сигнала гамма-излучения от образцов различной массы, содержащих известные концентрации целевого элемента, или расчетным путем с использованием общедоступных коэффициентов ослабления гамма-излучения.

Согласно одному варианту осуществления константа нормирования определяется экспериментально путем сравнения значений скорректированного значения сигнала с коэффициентом затухания и известной массы единственного или каждого целевого элемента во множестве образцов, предпочтительно константа нормирования представляет собой градиент линии тренда на графике зависимости скорректированного на затухание сигнала от массы целевого элемента.

Согласно одному варианту осуществления присутствуют два эталонных элемента, и значение сигнала целевого элемента составляет $R_t/[R_p f(R_s/R_p)]$, где R_t , R_p и R_s представляют собой скорректированные по времени скорости активации целевого элемента, первого (основного) эталонного элемента и второго эталонного элемента соответственно, и при этом $f(R_s/R_p)$ представляет собой экспериментально определенную функцию, связывающую соотношение R_t/R_p и соотношение R_s/R_p .

Согласно одному варианту осуществления функция f определяется экспериментально посредством следующих стадий:

- a) одновременное облучение образца, содержащего известное количество целевого элемента, и эталонного материала, содержащего первый эталонный элемент и второй эталонный элемент, тормозным рентгеновским излучением с определенной конечной энергией;
- b) обнаружение дезактивационного гамма-излучения от облученного образца и облученного эталонного материала;
- c) определение интенсивности обнаруженного дезактивационного гамма-излучения от любого целевого элемента, присутствующего в облученном образце, и по меньшей мере двух эталонных элементов;
- d) расчет степени активации образца и по меньшей мере двух эталонных элементов;
- e) повторение стадий (a)-(d) при различных значениях конечной энергии в диапазоне, достаточно большом, чтобы охватить типичное изменение в работе конечной энергии, которое ожидается; и
- f) создание справочной таблицы для функции, связывающей соотношение R_t/R_p и соотношение R_s/R_p .

Согласно одному варианту осуществления в число по меньшей мере двух эталонных элементов входят один элемент из Вг (бром), или Ер (эрбий), или Иг (иридий), и Тб (тербий).

Согласно одному варианту осуществления единственный или каждый целевой элемент имеет поро-

говую энергию реакции ниже 10 МэВ.

Согласно одному варианту осуществления в число по меньшей мере двух эталонных элемента входят один элемент из Ge (германий) или Pd (палладий), или Rb (рубидий), и Tb (тербий).

Согласно одному варианту осуществления единственный или каждый целевой элемент имеет пороговую энергию реакции для испускания нейтронов, составляющую от 10 МэВ до 14 МэВ.

Согласно второму аспекту настоящего изобретения предложена система гамма-активационного анализа, предназначенная для определения концентрации одного или нескольких целевых элементов в образце и содержащая:

а) источник рентгеновского излучения, пригодный для получения тормозного рентгеновского излучения;

б) систему обнаружения гамма-излучения;

в) вычислительное устройство, при этом во время работы образец и эталонный материал, содержащие по меньшей мере два эталонных элемента, которые проявляют отличающиеся друг от друга изменения скорости активации в предварительно определенном диапазоне конечной энергии рентгеновского излучения, подвергаются одновременному облучению с применением источника рентгеновского излучения для облучения тормозным рентгеновским излучением перед подачей в систему обнаружения гамма-излучения, причем интенсивность обнаруженного дезактивационного гамма-излучения от единственного или каждого целевого элемента, присутствующего в облучаемом образце, и по меньшей мере двух эталонных элемента определяют и направляют в вычислительное устройство, при этом вычислительное устройство определяет концентрацию единственного или каждого целевого элемента в образце посредством корректировки интенсивности обнаруженного дезактивационного гамма-излучения от единственного или каждого целевого элемента, присутствующего в облучаемом образце, вследствие различий в энергии или интенсивности тормозного рентгеновского излучения в зависимости от интенсивности обнаруженного дезактивационного гамма-излучения по меньшей мере от двух эталонных элементов.

Согласно одному варианту осуществления в число по меньшей мере двух эталонных элементов входят один элемент из Br (бром), или Er (эрбий), или Ir (иридий), и Tb (тербий).

Согласно одному варианту осуществления единственный или каждый целевой элемент имеет пороговую энергию реакции для испускания нейтронов ниже 10 МэВ.

Согласно одному варианту осуществления в число по меньшей мере двух эталонных элементов входят один элемент из Ge (германий) или Pd (палладий), или Rb (рубидий), и Tb (тербий).

Согласно одному варианту осуществления единственный или каждый целевой элемент имеет пороговую энергию реакции для испускания нейтронов, составляющую от 10 МэВ до 14 МэВ.

Согласно одному варианту осуществления система дополнительно содержит устройство подачи образца, которое переводит образец и эталонный материал в положение, подлежащее облучению тормозным рентгеновским излучением, и в систему обнаружения гамма-излучения.

Согласно третьему аспекту настоящего изобретения предложена система гамма-активационного анализа, пригодную для осуществления способа, предусмотренного в соответствии с первым аспектом настоящего изобретения.

Настоящее изобретение имеет следующие преимущества:

повышенная точность гамма-активационного анализа для определения концентрации элементов в образцах, в которых отсутствует подходящий единственный эталонный элемент; и улучшенная возможность одновременного измерения множества целевых элементов.

Предполагаемое применение настоящего изобретения представляет собой измерение концентраций элементов в образцах горных пород, горных работ, минеральных руд или технологических потоков. Примерные целевые элементов представляют собой, но без ограничения, золото, серебро, медь, свинец, цинк и олово.

Другие применения могут представлять собой измерения почвы, промышленных материалов, обычных или электронных отходов и других типов материалов.

Краткое описание фигур

Далее будут описаны варианты осуществления настоящего изобретения со ссылкой на прилагаемые фигуры. Следует понимать, что эти варианты осуществления представлены исключительно в качестве иллюстрации, и настоящее изобретение не ограничивается данной иллюстрацией. В числе фигур:

на фиг. 1 схематически проиллюстрирована система гамма-активационного анализа с применением по меньшей мере одного варианта осуществления настоящего изобретения;

на фиг. 2 проиллюстрирована таблица, представляющая реакции активации свойства распада для потенциальных элементов эталонного материала;

на фиг. 3 проиллюстрирован график, представляющий экспериментально определенные изменения скоростей активации для образования $^{97\text{M}}\text{Au}$, $^{107\text{M}}\text{Ag}$ и $^{109\text{M}}\text{Ag}$ по отношению к скорости образования $^{79\text{M}}\text{Br}$ в зависимости от конечной энергии LINAC с соотношениями, нормированными к единице при конечной энергии 8,5 МэВ;

на фиг. 4 проиллюстрирован график, представляющий экспериментально определенные изменения скоростей активации для образования $^{158\text{M}}\text{Tb}$, $^{167\text{M}}\text{Er}$ и $^{191\text{M}}\text{Ir}$ по отношению к скорости образования $^{79\text{M}}\text{Br}$

в зависимости от конечной энергии LINAC с соотношениями, нормированными к единице при конечной энергии 8,5 МэВ;

на фиг. 5 проиллюстрирован график, представляющий экспериментально определенные изменения скоростей активации для образования $^{75\text{M}}\text{Ge}$, $^{86\text{M}}\text{Rb}$, $^{109\text{M}}\text{Pd}$ и $^{158\text{M}}\text{Tb}$ по отношению к скорости образования ^{62}Cu в зависимости от конечной энергии LINAC с соотношениями, нормированными к единице при конечной энергии 12 МэВ.

Подробное раскрытие настоящего изобретения

Как обсуждалось ранее, в публикации WO 2015089580 раскрыто, что основные источники неопределенности при вычислении количества золота в образце с использованием гамма-активационного анализа (ГАА) относятся к потоку и энергетическому спектру рентгеновского излучения от источника, с которыми связана флуктуация интенсивности или энергии электронного луча, производящего рентгеновские лучи.

Установлено, что изменения скорости активации золота и брома в зависимости от энергии рентгеновского излучения являются очень близкими в диапазоне конечных энергий LINAC от 8,0 до 9,0 МэВ. Следовательно, если образец с неизвестным содержанием золота облучать одновременно с эталонным материалом, содержащим известное количество элемента брома, то соотношение скоростей активации золота и брома будет приблизительно постоянным для рентгеновского излучения при граничных энергиях в этом диапазоне. Нормирование интенсивности гамма-излучения золота по интенсивности гамма-излучения брома существенно корректирует изменения как интенсивности рентгеновского излучения, так и конечной энергии.

Для ясности термин "скорость активации", используемый в описании настоящего изобретения, означает для данной реакции количество ядер продукта, образующихся в единицу времени. Если ядерная частица X преобразуется падающим рентгеновским лучом во вторую ядерную частицу X*, то скорость $R_{X \rightarrow X^*}$ реакции образования атомов X* из атомов X определяется следующим выражением:

$$R_{X \rightarrow X^*} = N_X \int_{E_{\text{THR}}}^{E_{\text{MAX}}} \Phi(E) \sigma(E) dE$$

где N_X представляет собой количество атомов типа X, присутствующих в образце или эталонном материале, $\Phi(E)$ представляет собой средний поток рентгеновских фотонов внутри области, содержащей атомы типа X, выраженный как функция энергии рентгеновского излучения E, $\sigma(E)$ представляет собой микроскопическое поперечное сечение реакции для образования атома X* из атома X, которое также представляет собой функцию энергии рентгеновского излучения, а интегрирование осуществляется от нижнего энергетического порога реакции E_{THR} до максимальной энергии рентгеновского излучения или конечной энергии E_{MAX} , испускаемой источником.

На практике энергетическая зависимость потока рентгеновских фотонов и микроскопического поперечного сечения реакции могут быть известны только с ограниченной точностью, но скорость реакции может быть точно определена для данного источника рентгеновского излучения путем экспериментального измерения испускания гамма-излучения, испускаемого атомами X* после рентгеновского облучения известного количества X.

Гамма-активационный анализ является применимым для определения концентрации любого элемента с подходящей реакцией активации, и действительно, основные источники неопределенности при расчете концентрации любого элемента в образце с использованием ГАА связаны с потоком и энергетическим спектром рентгеновского излучения из источника.

Однако обнаружение двух элементов, скорость активации которых зависит от энергии рентгеновского излучения, встречается нечасто. Когда необходимо измерить содержание целевых элементов, таких как серебро, медь и другие, не существует удобного эталонного элемента, который можно было бы использовать, в отличие от ситуации с золотом. Соответственно, решающий фактор для выбора одного эталонного элемента заключается в том, что изменение соотношения поперечного сечения эталонного элемента и целевого элемента в диапазоне энергий электронного пучка является одинаковым или очень близким (в пределах заданной точности измерения), как указано в публикации WO 2015089580, оказывается невозможным или нецелесообразным для многих целевых элементов.

Кроме того, одновременное измерение нескольких целевых элементов в одном и том же образце также потребует, чтобы эталонный материал содержал несколько эталонных элементов (как правило, по одному на каждый целевой элемент), что увеличивает вероятность нежелательных интерференций между гамма-излучением, испускаемым эталонным образцом и целевыми элементами.

Ускорители для промышленного гамма-активационного анализа являются подходящими для генерации электронных пучков с энергиями, составляющими вплоть до приблизительно 15 МэВ. Наименьшая полезная энергия для эффективной активации обычно составляет приблизительно 6 МэВ. В этом диапазоне энергий находятся две важные категории реакции активации, приводящие к образованию радиоизотопов из целевых элементов: неупругое рассеяние, создающее ядерное изомерное состояние, также известное как метасостояние, и испускание нейтронов. Примеры этих двух типов реакции представляют

собой следующие.

Образование изомеров: золото: $^{197}\text{Au}(\text{g},\text{g}')$ $^{197\text{M}}\text{Au}$; период полураспада = 7,73 с; энергия гамма-излучения = 279 кэВ. Пороговое значение: менее 1 МэВ.

Нейтронная эмиссия: медь: $^{63}\text{Cu}(\text{g},\text{n})$ ^{62}Cu ; период полураспада = 9,62 мин; энергия гамма-излучения=511 кэВ. Пороговое значение: 10,9 МэВ.

Скорость производства данного радионуклеотида увеличивается линейно в зависимости от интенсивности рентгеновского излучения и, как правило, более сильно (суперлинейно) в зависимости от энергии рентгеновского излучения для энергий выше порога реакции. Прибор, выполняющий гамма-активационный анализ, должен быть способен точно оценивать или измерять скорость активации целевого элемента во время проведения анализа, чтобы можно было соотнести измеренную интенсивность гамма-излучения для данного целевого элемента с концентрацией этого элемента в образце.

Далее рассмотрим фиг. 1, где согласно варианту осуществления настоящего изобретения присутствуют облучающая установка 100 и система 110 обнаружения гамма-излучения. Материал образца, элементный состав которого необходимо определить, загружают в контейнер 101 для образцов. Контейнер 101 для образцов первоначально направляется в облучающую установку 100 с помощью устройства 104 подачи образцов и размещается вблизи источника 102 рентгеновского излучения, который обеспечивает тормозное рентгеновское излучение через ускоритель электронов, снабженный мишенью тормозного излучения. Ускоритель электронов предпочтительно представляет собой линейный ускоритель (LINAC). В облучающей установке 100 также присутствует радиационная защита (не проиллюстрирована в целях ясности), которая защищает операторов при работе с источником. Эталонный диск 103, содержащий эталонные материалы, содержащие два или более эталонных элемента, съемно прикрепляется к внешней стороне контейнера 101 для образцов.

Хотя во всем тексте описания настоящего изобретения упоминается термин "эталонный диск", следует понимать, что эталонные материалы могут быть предоставлены любым подходящим образом для всех вариантов осуществления, при том условии, что эти эталонные материалы способны облучаться одновременно с соответствующим контейнером для образцов, который, как ожидается, будет содержать целевой элемент и располагаться с возможностью удаления в устойчивом положении по отношению к образцу для всех описанных здесь вариантов осуществления. Следовательно, эталонные материалы могут быть помещены в контейнер или упаковку любой подходящей формы. Например, эталонный материал может быть расположен в кольцеобразной форме, которая окружает контейнер 101 для образцов.

Система 110 обнаружения гамма-излучения содержит один или несколько детекторов 111, 112 гамма-излучения, расположенных вокруг образца в его контейнере 101, и эталонный диск 103. Система 110 обнаружения гамма-излучения содержит устройства для сбора сигналов от детекторов 111, 112 гамма-излучения и передает информацию, касающуюся энергии и интенсивности зарегистрированного гамма-излучения, в вычислительное устройство или аналитическую систему 113, которая обрабатывает эту информацию для определения содержания элементов в образце.

В процессе работы контейнер 101 для образцов, содержащий материал образца, сначала загружают в облучающую установку 100. Источник 102 рентгеновского излучения работает в течение определенного периода времени, чтобы вызвать активацию элементов в материале образца внутри контейнера 101 для образцов, а также эталонного материала, который содержится в эталонном диске 103.

После завершения периода облучения контейнер 101 для образцов переносится устройством 104 подачи образцов в систему 110 обнаружения гамма-излучения. Устройство 104 подачи образцов может представлять собой пневматическое, электрическое или любое другое подходящее устройство. Устройство 104 подачи образцов представляет собой необязательный компонент системы, и подача образца может осуществляться в ручном, а не автоматическом режиме.

В системе 110 обнаружения контейнер 101 для образцов располагается вблизи по меньшей мере одного детектора 111 гамма-излучения. Второй 112 или дополнительные детекторы могут быть использованы для повышения эффективности, с которой может быть обнаружено гамма-излучение, испускаемое образцом.

В идеальном случае по меньшей мере один детектор 111 располагается рядом с той стороной контейнера 101 для образцов, к которой прикреплен эталонный диск 103. Следовательно, этот детектор 111 может обнаруживать гамма-излучение, испускаемое эталонным диском 103, при этом упомянутое гамма-излучение не должно проходить через материал образца в контейнере 101 для образцов и, таким образом, подвергаться ослаблению.

Аналитическая система 113 регистрирует и подсчитывает сигналы гамма-излучения от детекторов 111, 112. Аналитическая система 113 различает энергию обнаруженного гамма-излучения, обеспечивая разделение сигналов от активированных элементов в материале образца в контейнере 101 и сигналов от эталонного диска 103.

Контейнер 101 для образцов остается в системе 110 обнаружения до тех пор, пока не истечет достаточное время для подсчета сигналов от активированных элементов в контейнере 101 для образцов и в эталонном диске 103 с требуемым уровнем точности. Затем контейнер 101 для образцов может быть возвращен для дальнейшего цикла активации и измерения или извлечен из измерительной системы, чтобы

можно было проанализировать новый контейнер для образцов. Система 104 подачи образцов может обеспечивать одновременную активацию и измерение различных образцов для повышения пропускной способности.

Эталонный диск 103 содержит эталонные элементы, выбранные с учетом следующих соображений:

Изменения скорости активации с конечной энергией LINAC для эталонных элементов отличаются друг от друга по сравнению с разницей в изменении скорости активации с конечной энергией LINAC целевого элемента (элементов) и любого из эталонных элементов. Наиболее предпочтительно, чтобы изменение скорости активации в зависимости от энергии одного из эталонных элементов было близким к изменению скорости активации в зависимости от энергии целевого элемента (элементов), а изменение скорости активации в зависимости от энергии другого эталонного элемента (элементов) значительно отличалось. Близким в этом контексте считается отклонение менее чем на 3% от предварительно определенной конечной энергии. Существенным отличием в этом контексте является отклонение более чем на 20% по сравнению с предварительно определенной конечной энергией. Менее предпочтительно, чтобы по меньшей мере один из эталонных элементов демонстрировал изменение скорости активации с энергией, которая значительно меньше, чем у целевого элемента (элементов), и по меньшей мере один из эталонных элементов должен демонстрировать изменение скорости активации с энергией, которое значительно больше, чем у целевого элемента (элементов). В качестве альтернативы, два или более эталонных элемента демонстрируют изменения скорости активации, которые меньше, чем у целевого элемента (элементов), или демонстрируют изменения скорости активации, которые больше, чем у целевого элемента (элементов), но изменения различаются для отдельных эталонных элементов.

Не ожидается присутствия эталонных элементов в значительных концентрациях в измеряемых материалах образцов. В частности, масса каждого эталонного элемента, присутствующего в образце, должна составлять менее чем 10% от массы того же эталонного элемента в эталонном диске, предпочтительно менее чем 1%.

Взаимодействие рентгеновских лучей со всеми эталонными элементами приводит к образованию нестабильного изотопа с подходящим периодом полураспада, находящимся предпочтительно в диапазоне от 1 секунды до 10 минут.

Нестабильные изотопы, образующиеся в результате реакции, индуцированной рентгеновским излучением, производят сильное гамма-излучение одного или нескольких типов. В частности, нестабильные изотопы производят гамма-излучение по меньшей мере одного типа с энергией выше 40 кэВ с вероятностью на распад 1% или более, и предпочтительнее гамма-излучение с энергией выше 60 кэВ или с вероятностью, составляющей 10% или более.

Величины энергии гамма-излучения, испускаемого нестабильными изотопами, не препятствуют измерению гамма-излучения, испускаемого элементами, активированными в материале образца.

Скорости активации эталонных элементов могут быть математически объединены для определения количества, равного ожидаемой скорости активации целевого элемента (элементов) в неизвестном образце, независимо от изменений интенсивности или энергии выходящего из источника рентгеновского излучения. Эта вычисленная скорость активации целевых элементов затем может быть использована для вычисления концентрации целевого элемента из измеренной интенсивности гамма-излучения, испускаемого одним или несколькими радиоизотопами, которые образуются в результате реакции целевых элементов с рентгеновским излучением.

Критерии выбора подходящих эталонных элементов обсуждались выше. На фиг. 2 представлена таблица, в которой перечислены элементы периодической системы, которые имеют реакции активации, индуцированные рентгеновским излучением, с пороговой энергией ниже 15 МэВ, естественным содержанием изотопов не менее 1%, периодом полураспада продукта в диапазоне от 1 секунды до 10 минут, и которые производят гамма-излучение по меньшей мере одного типа с энергией выше 40 кэВ с вероятностью, составляющей 1% и более. Что касается естественного содержания, предпочтительными являются более высокие естественные содержания, поскольку для получения определенного количества желаемого изотопа требуется меньшее количество эталонного элемента, а количество нежелательных изотопов того же элемента уменьшается, что снижает значимость любых потенциально препятствующих реакций. Данные, использованные для заполнения таблицы на фиг. 2, в том числе содержание изотопов, пороговые значения реакций, периоды полураспада продуктов, энергии и интенсивности гамма-излучения при распаде, легко доступны в научной литературе. Например, некоторые или все эти данные можно получить в Ядерной информационной службе данных Международного агентства по атомной энергии, доступной в Интернете по адресу www-nds.iaea.org.

В столбцах в таблице на фиг. 2 представлены:

целевой элемент - потенциальный эталонный элемент и конкретный изотоп, который подвергается активации;

содержание (%) - природное содержание данного изотопа;

реакция - тип реакции; либо испускание нейтронов (g,n), либо неупругое рассеяние (g,g);

порог (МэВ) - пороговая энергия реакции для реакций испускания нейтронов;

продукт - изотоп продукта реакции захвата; следует отметить, что продукт может находиться либо

в основном состоянии, либо в метасостоянии, последнее обозначается верхним индексом "m";

период полураспада - период полураспада продукта;

интерференция - показатель того, могут ли конкурирующие реакции на одном и том же элементе, производящие интенсивное и/или долгоживущее гамма-излучение, быть возбуждены с использованием одинаковых энергий рентгеновского излучения, необходимых для рассматриваемой реакции; и

распадное излучение - энергия и интенсивность (%) основного рентгеновского или гамма-излучения, испускаемого изотопа продукта.

Выбор наиболее подходящих эталонных элементов зависит от концентраций и характеристик распада других элементов в материале образца, которые должны быть измерены с помощью активационного анализа, а также от продолжительности анализа. Например, если аналитическая система должна измерять 60 образцов в час, то удобно выбирать эталонные элементы с периодом полураспада, составляющим 2 минуты или менее. Затем аналитическая система может по очереди выбирать один из небольшого числа эталонных дисков (обычно 3-6), и остаточная активность предыдущего цикла с использованием этого эталонного диска существенно снижается.

Кроме того, эталонные элементы будут производить гамма-излучение подходящей энергии, которое не препятствует гамма-излучению целевого элемента. Кроме того, не следует ожидать присутствия эталонных элементов в измеряемых образцах в значительных концентрациях. Масса каждого эталонного элемента, присутствующего в образце, должна составлять менее 10% массы того же эталонного элемента в эталонном диске. Предпочтительно, чтобы масса каждого эталонного элемента, присутствующего в образце, составляла менее 1% от массы того же эталонного элемента в эталонном диске.

Другой фактор, который влияет на выбор эталонного элемента, представляет собой отсутствие нежелательных радиоактивных продуктов, образующихся в результате других индуцированных рентгеновским излучением реакций на целевом изотопе или других природных изотопах в эталонном элементе. Если эти реакции имеют неблагоприятные свойства распада, они могут неблагоприятным образом воздействовать на измерение желаемых продуктов распада как эталонного элемента, так и анализируемых элементов в образце. Предпочтительными являются эталонные элементы, в которых целевой изотоп составляет 100% или почти 100% естественного изотопного содержания, чтобы избежать или свести к минимуму интерференционные реакции этого класса. В качестве альтернативы, эталонные элементы могут быть выбраны, если встречающиеся в природе изотопы, отличные от целевого изотопа, не приводят к образованию нестабильных продуктов реакции в ядерных реакциях, индуцированных рентгеновским излучением, или продукты этих реакций имеют чрезвычайно длинный или короткий период полураспада, или продукты эти реакции не испускают интенсивного гамма-излучения.

Для иллюстрации выбора оптимальных эталонных элементов представлены два примера.

Первый пример представляет собой одновременный анализ золота и серебра с помощью неупругого рассеяния фотонов. Реакция $^{197}\text{Au}(g, g')^{197m}\text{Au}$ приводит к образованию изомерного состояния золота-197 с периодом полураспада 7,73 секунды и распаду с образованием гамма-излучения с энергией 279 кэВ. Оба встречающихся в природе изотопа серебра могут быть активированы аналогичным образом, создавая изомерные состояния ^{107m}Ag и ^{109m}Ag с периодами полураспада, составляющими 44,3 и 39,8 секунд, и испуская гамма-излучение с энергиями, составляющими 93,1 и 88 кэВ, соответственно. Конечная энергия рентгеновского излучения 8,5 МэВ является пригодной для активации как золота, так и серебра.

Использование брома в качестве элемента сравнения для золота было продемонстрировано ранее, поскольку соотношение активации золота и брома демонстрирует минимальную зависимость от энергии в диапазоне энергий от 8 до 9 МэВ. Однако существует небольшая остаточная вариация в зависимости от энергии, которая может быть важна для высокоточного анализа, а вариация соотношения активации серебра и брома в зависимости от энергии в конечной точке выражена в большей степени. На фиг. 3 представлены экспериментально определенные соотношения активации золото/бром и серебро/бром в зависимости от конечной энергии LINAC в приблизительном диапазоне от 7,5 до 9,5 МэВ.

Изучение таблицы на фиг. 2 для элементов с порогом активации ниже конечной энергии 8,5 МэВ для измерения золота и серебра показывает следующие эталонные возможности: Br, Y, Tb, Er, Hf, W и Ir. Эти элементы вступают в реакции образования изомеров, которые имеют плохо определенные пороги (отмечены "-" в таблице), но обычно становятся значимыми при энергиях конечной точки рентгеновского излучения выше 6 МэВ. В этом примере Y больше не рассматривается, поскольку его высокая энергия гамма-излучения (909 кэВ) создает нежелательный фон под линиями золота и серебра с более низкими энергиями, что ухудшает качество анализа образцов материалов с низкими концентрациями целевых элементов. Кроме того, W больше не рассматривается, поскольку он обычно встречается в заметных концентрациях в геологических месторождениях золота, а Hf больше не рассматривается, поскольку реакции с образованием других долгоживущих изотопов имеют пороговые значения ниже 8,5 МэВ.

Выбор между этими вариантами зависит от того, как скорость их активации варьируется по сравнению со скоростью ^{79m}Br (что, в свою очередь, очень близко соответствует скорости изомерной активации золота и серебра). Данные о поперечном сечении реакций высокого качества для оценки этих соотношений скоростей активации, как правило, недоступны. Однако относительные скорости активации можно легко определить экспериментально, приготовив образец, содержащий рассматриваемые элементы, а

затем измерив выходы гамма-излучения различных реакций с помощью LINAC, работающего для получения различных конечных энергий. На фиг. 4 представлены скорости активации Tb, Er и Ig по отношению к скорости активации брома в зависимости от конечной энергии LINAC. Соотношения скоростей активации произвольно нормированы к единице при конечной энергии 8,5 МэВ.

Из результатов, представленных на фиг. 4, видно, что скорости активации $^{167\text{M}}\text{Er}$ и $^{191\text{M}}\text{Ig}$ очень близки к скорости активации для $^{79\text{M}}\text{Br}$, поскольку соотношение скоростей активации приближается к единице во всем диапазоне энергий. Напротив, скорость активации $^{158\text{M}}\text{Tb}$ значительно возрастает с увеличением энергии по сравнению со скоростью активации брома.

Следовательно, элементы Br, Er или Ig и элемент Tb будут представлять собой оптимальные эталонные элементы для точного измерения золота и серебра в неизвестных образцах. Элемент из первого списка, далее именуемый первым или первичным эталонным элементом, довольно близко отслеживает уровень активации золота и серебра. Элемент, выбранный из второго списка, далее упоминается как второй или вторичный эталонный элемент. Соотношение скоростей активации вторичных и первичных эталонных элементов в значительной степени зависит от конечной энергии LINAC и может использоваться для коррекции небольших отклонений в соотношении скоростей активации целевых элементов (здесь это золото и серебро) от первичного эталонного элемента с применением описанной ниже процедуры.

Второй пример представляет собой анализ медных руд. Медь целесообразнее анализировать с помощью реакции $^{63}\text{Cu}(g,n)^{62}\text{Cu}$, при этом медь-62 распадается с периодом полураспада 9,67 минут в результате испускания позитрона, который, в свою очередь, производит пару гамма-квантов с энергией 511 кэВ. Реакция испускания нейтронов меди-63 имеет пороговую энергию 10,9 МэВ и может быть удобно измерена с помощью LINAC, работающего для получения рентгеновского излучения с конечной энергией, составляющей приблизительно 12 МэВ. Гамма-излучение меди с энергией 511 кэВ возникает в результате аннигиляции позитронов, испускаемых при распаде меди-62; желательно избегать использования эталонных элементов, которые также распадаются с испусканием позитронов, чтобы избежать интерференции с сигналом меди. Установление целевой пропускной способности, составляющей приблизительно 60 образцов в час, ограничивает выбор эталонными элементами с периодом полураспада менее 1-2 минут, как обсуждалось в предыдущем примере. Кроме того, по меньшей мере один из эталонных элементов должен иметь порог активации в пределах примерно 1,5 МэВ от порога активации меди, чтобы обеспечить в целом аналогичный ответ активации в зависимости от конечной энергии. По меньшей мере один из эталонных элементов может иметь более низкий порог активации, чтобы обеспечить значительно отличающийся отклик по сравнению с конечной энергией.

С учетом этих требований список возможных эталонных элементов в таблице на фиг. 2 можно свести к следующим элементам: Ge, Se, Br, Rb, Pd, Ag, Sb, Ce, Nd и Tb. Элементы Se, Br, Ag, Sb, Ce и Nd далее не рассматриваются, так как конкурирующие реакции приводят к образованию нежелательных изотопов продуктов с сильным гамма-излучением (включая в некоторых случаях гамма-излучение с энергией 511 кэВ) при использовании конечной энергии 12 МэВ.

Например, образование $^{141\text{M}}\text{Nd}$ в результате испускания нейтронов из ^{142}Nd неизбежно сопровождается образованием ^{149}Nd в результате испускания нейтронов из ^{150}Nd . Изотоп ^{149}Nd является сильным излучателем гамма-излучения, и гораздо более низкая пороговая энергия для этой реакции означает, что его гамма-излучение доминирует в спектре излучения эталонного материала, содержащего Nd. Несмотря на то, что является доступным изотопно-разделенный или обогащенный материал, содержащий почти чистый ^{142}Nd , он имеет чрезмерно высокую стоимость для повседневного промышленного использования.

На фиг. 5 графически представлена скорость активации остальных элементов Ge, Rb, Pd и Tb, деленная на скорость активации меди; эти соотношения произвольно нормированы к отношению к единице при конечной энергии мишени, составляющей 12 МэВ.

В отличие от предыдущего примера, где скорости активации для Br, Er и Ig близко соответствуют скоростям активации для золота и серебра, все возможные эталонные элементы демонстрируют значительные различия в конечной энергии LINAC по сравнению с медью. Однако Ge и Pd демонстрируют сравнительно меньшую вариацию, а Rb и Tb демонстрируют сравнительно большую вариацию. Следовательно, элементы Ge или Pd и Rb или Tb могут быть использованы для проведения точного анализа меди с поправкой на изменения интенсивности или энергии рентгеновского излучения, как описано ниже.

Как только были идентифицированы первичные (p) и вторичные (s) эталонные элементы, учитывая, что обозначение первичных и вторичных элементов, как правило, является произвольным, процесс корректировки скорости активации целевого элемента в образце осуществляется следующим образом.

Предположим, что интенсивности измеренного гамма-излучения от целевых, первичных эталонных и вторичных эталонных элементов составляют $N_{\gamma\text{t}}$, $N_{\gamma\text{p}}$ и $N_{\gamma\text{s}}$, соответственно. Предположим, что периоды полураспада продуктов реакций на эти элементы соответственно составляют $\text{thalf}_{\text{t,p,s}}$, а связанные с ними скорости распада, которые определены выражением $\lambda = \ln(2)/\text{thalf}$, составляют $\lambda_{\text{t,p,s}}$.

Скорректированные по времени коэффициенты активации целевого элемента, первичного эталонного элемента и вторичного эталонного элемента, соответственно, вычисляются по следующему уравнению:

$$R_{t,p,s} = N_{\gamma t,p,s} \frac{r_{t,p,s}}{(1 - \exp(-r_{t,p,s} t_i)) \cdot \exp(-r_{t,p,s} t_c) \cdot (1 - \exp(-r_{t,p,s} t_m))} \quad (\text{уравнение 1})$$

где t_i , t_c и t_m представляют собой, соответственно, величины продолжительности облучения, охлаждение и измерения, которые используются для активационного анализа.

После этого сигнал для целевого элемента с поправкой на изменения энергии LINAC и выход S записывается по следующему уравнению:

$$S = \frac{R_t}{R_p f(R_s/R_p)} \quad (\text{уравнение 2})$$

где $f(R_s/R_p)$ представляет собой экспериментально определяемую функцию, которая равняется с точностью до произвольного нормировочного коэффициента соотношению R_t/R_p . Здесь термин "сигнал" относится к промежуточной математической величине, которая для данного образца пропорциональна массе целевого элемента в образце. По своей конструкции сигнал не зависит от вариаций интенсивности рентгеновского излучения, поскольку они вызывают пропорциональные изменения как R_t , так и R_p . Эта функция корректирует изменения конечной энергии LINAC.

Один из способов поиска заключается в следующем. Изготавливается эталонный материал, который содержит первичный эталонный элемент и вторичный эталонный элемент. Изготавливается образец, содержащий известное количество целевого элемента, достаточное для получения сильной сигнатуры гамма-излучения. Образец и эталонный материал активируются вместе с помощью рентгеновского излучения, измеряются с помощью системы детектора гамма-излучения, и регистрируется количество импульсов гамма-излучения от целевого элемента, первичного эталонного элемента и реакций вторичного эталонного элемента. Измерения повторяются с изменением конечной энергии LINAC в достаточно большом диапазоне, чтобы охватить типичное изменение энергии в конечной точке, ожидаемое во время обычной работы источника. Коэффициенты активации с поправкой на время рассчитывают в соответствии с уравнением 1. Затем составляется эталонная таблица для функции f , связывающей отношение R_t/R_p и R_s/R_p . Шаги между конечными энергиями LINAC, используемые в исследовании, должны быть достаточно малы, чтобы можно было использовать линейную или кубическую сплайн-интерполяцию для определения значений функции f в промежуточных точках с точностью, по меньшей мере, такой же хорошей, как проектная точность анализа для целевых элементов.

Оказывается предпочтительным, чтобы количество первичных и вторичных эталонных элементов было выбрано таким образом, чтобы интенсивность наблюдаемого гамма-излучения от продуктов соответствующей реакции позволяло определить скорости активации для этих элементов со статистической точностью 5%. Предпочтительнее интенсивность гамма-излучения должна обеспечивать определение скорости активации с точностью до 3% или еще предпочтительнее с точностью до 1%. Это гарантирует, что скорость активации с поправкой на время для первичного элемента и соотношение скоростей активации с поправкой на время для вторичного и первичного элементов могут быть определены с высокой статистической точностью. Соответствующее количество каждого эталонного элемента может быть определено путем масштабирования массы, используемой в экспериментах, проведенных для измерения отношений скоростей активации в зависимости от энергии LINAC, на соотношение интенсивности гамма-излучения целевого элемента, измеренного в ходе указанных экспериментов, и желательной интенсивности гамма-излучения, которые будут измерены во время обычных аналитических операций.

Для первого рассмотренного выше примера, в котором целевые элементы представляют собой серебро и золото, если LINAC работает с конечной энергией 8,5 МэВ и выходной мощностью 160 Зв/мин на расстоянии 1 м, то 200 мг Вг и 400 мг Тб представляют собой соответствующие количества.

Для второго рассмотренного выше примера, в котором целевой элемент представляет собой медь, если LINAC работает с конечной энергией 12 МэВ и выходной мощностью 40 Зв/мин на расстоянии 1 м, то 400 мг Ge и 8 мг Тб представляют собой соответствующие количества.

Масса целевого элемента в образце может быть вычислена по сигналу путем поправки на затухание падающего рентгеновского излучения от источника LINAC и гамма-излучения целевого элемента в образце и, наконец, умножения на константу нормирования. Определение коэффициента ослабления, зависящего от массы образца, может быть выполнено либо экспериментально путем измерения сигнала гамма-излучения от образцов различной массы, содержащих известные концентрации целевого элемента, либо расчетным путем с использованием общедоступных коэффициентов ослабления гамма-излучения. Метод компьютерного моделирования переноса излучения, такой как метод моделирования Монте-Карло, представляет собой удобное средство осуществления расчетов затухания. Значение константы нормирования может быть определено экспериментально путем сравнения значений скорректированного по коэффициенту затухания сигнала и известной массы целевого элемента в наборе образцов. График зависимости сигнала с поправкой на затухание от массы целевого элемента должен представлять собой прямую линию, наклон которой равен значению константы нормирования. Таким образом, константа нормирования представляет собой градиент линии тренда графика зависимости сигнала с поправкой на затухание от массы целевого элемента.

Наконец, концентрация целевого элемента в образце может быть определена в результате деления измеренной массы целевого элемента в образце на массу образца.

В целом, первый (или первичный) эталонный элемент из Вг, Ег или Ig и второй (или вторичный) эталонный элемент из Tb, как правило, будут пригодными для использования в целях корректировки измерений других элементов, доступных с конечной энергией LINAC ниже 10 МэВ. Аналогичным образом, первый эталонный элемент из Ge, Pd или Rb и второй эталонный элемент из Tb будут пригодными для использования для других элементов, доступных с конечными энергиями LINAC в диапазоне от 11 до 14 МэВ.

Хотя настоящее изобретение было описано в связи с ограниченным числом вариантов осуществления, специалистам в данной области техники будет понятно, что возможны многочисленные альтернативы, модификации и вариации в свете предшествующего описания. Соответственно, настоящее изобретение предназначено для распространения на все такие альтернативы, модификации и вариации, которые могут находиться в пределах идеи и объема раскрытого изобретения.

Любое упоминание или обсуждение любого документа, действия или элемента знаний в описании настоящего изобретения присутствуют исключительно с целью предоставления контекста для настоящего изобретения. Не предполагается и не утверждается, что какие-либо из этих вопросов или какие-либо их комбинации составляли на дату приоритета часть общеизвестных сведений или было известно, что они имеют отношение к попытке решить какую-либо проблему, к которой имеет отношение описание настоящего изобретения.

В описании настоящего изобретения термины "содержит", "содержащий", "включает", "включающий" или аналогичные термины предназначены для обозначения неисключительного присутствия, таким образом, что в способе, системе или устройстве, в которых присутствует список элементов, присутствуют не только эти элементы, но вполне могут присутствовать и другие элементы, не перечисленные в данном списке.

ФОРМУЛА ИЗОБРЕТЕНИЯ

1. Способ определения концентрации одного или нескольких целевых химических элементов в образце, включающий:

i) одновременное облучение тормозным рентгеновским излучением образца и эталонного материала, содержащего по меньшей мере два эталонных химических элемента, таким образом, чтобы активированные ядра образовывались по меньшей мере в некоторых целевых химических элементах или в каждом из целевых химических элементов, присутствующих в образце, и для образования активированных ядер в по меньшей мере двух эталонных химических элементах;

ii) обнаружение гамма-излучения активированных (возбужденных) тормозным рентгеновским излучением ядер от облученного образца и облученного эталонного материала;

iii) определение интенсивности обнаруженного гамма-излучения от единственного или каждого целевого химического элемента, присутствующего в облученном образце, и по меньшей мере двух эталонных химических элементов;

iv) определение концентрации единственного или каждого целевого химического элемента в образце, включающее корректировку интенсивности обнаруженного гамма-излучения по единственному или каждому целевому химическому элементу, присутствующему в облученном образце, вследствие отклонений в конечной энергии и интенсивности в тормозном рентгеновском излучении на основании интенсивности обнаруженного гамма-излучения по меньшей мере от двух эталонных химических элементов, где для корректировки интенсивности обнаруженного гамма-излучения единственного или каждого целевого химического элемента используются калибровочные измерения интенсивности обнаруженного гамма-излучения из образца, содержащего известную концентрацию целевого химического элемента, и, по меньшей мере двух эталонных химических элементов, при этом калибровочные измерения повторяются с изменением конечной энергией тормозного рентгеновского излучения,

при этом по меньшей мере два эталонных химических элемента проявляют изменения скорости активации в предварительно определенном диапазоне конечной энергии рентгеновского излучения, которые отличаются друг от друга, и при этом по меньшей мере два эталонных химических элемента отличаются от единственного или каждого целевого химического элемента.

2. Способ по п. 1, в котором по меньшей мере один из эталонных химических элементов демонстрирует изменение скорости активации в предварительно определенном диапазоне конечной энергии рентгеновского излучения, которое отличается менее чем на 3% от изменения скорости активации единственного или каждого целевого химического элемента, и предпочтительно, в котором по меньшей мере один из эталонных химических элементов демонстрирует изменение скорости активации в предварительно определенном диапазоне конечной энергии рентгеновского излучения, которое отличается более чем на 20% от изменения скорости активации единственного или каждого целевого химического элемента; или в котором по меньшей мере один из эталонных химических элементов демонстрирует изменение скорости активации в предварительно определенном диапазоне конечной энергии рентгеновского излу-

чения, которое отличается более чем на 20% от изменения скорости активации другого из эталонных химических элементов.

3. Способ по п.1, в котором по меньшей мере два из эталонных химических элементов демонстрируют изменение скорости активации в предварительно определенном диапазоне конечной энергии рентгеновского излучения, которое составляет менее чем изменения скорости активации единственного или каждого целевого химического элемента, или более чем изменения скорости активации единственного или каждого целевого химического элемента.

4. Способ по любому из пп.1-3, в котором активированные ядра по меньшей мере двух эталонных химических элементов имеют период полураспада, находящийся в диапазоне от 1 с до 10 мин и предпочтительно составляющий менее чем 2 мин, и, предпочтительно, в котором активированные ядра по меньшей мере двух эталонных химических элементов испускают гамма-излучение одного или нескольких типов с энергией выше 40 кэВ с вероятностью на распад, составляющей 1% или более.

5. Способ по любому из пп.1-4, в котором энергии гамма-излучения, испускаемого активированными ядрами, не препятствуют измерению гамма-излучения, испускаемого одним или каждым целевым химическим элементом; и предпочтительно, в котором энергии гамма-излучения, испускаемого активированными ядрами, не препятствуют измерению гамма-излучения, испускаемого любыми другими химическими элементами, присутствующими в образце.

6. Способ по любому из пп.1-5, в котором целевой химический элемент и по меньшей мере два эталонных химических элемента имеют индуцированные рентгеновским излучением реакции активации с пороговой энергией ниже 15 МэВ.

7. Способ по любому из пп.1-6, в котором по меньшей мере два эталонных химических элемента производят активированные ядра из изотопов с естественным содержанием, составляющим более чем 90%, предпочтительно 99%.

8. Способ по любому из пп.1-7, в котором по меньшей мере два эталонных химических элемента, если они присутствуют в образце, должны иметь массу в образце, которая составляет менее чем 10%, предпочтительно менее чем 1% массы соответствующего эталонного химического элемента в эталонном материале.

9. Способ по любому из пп.1-8, в котором определение концентрации единственного целевого химического элемента или каждого целевого химического элемента включает следующие стадии:

а) вычисление скоростей активации с поправкой на время единственного или каждого целевого химического элемента и по меньшей мере двух эталонных химических элементов;

б) определение значения сигнала целевого химического элемента для единственного или каждого целевого химического элемента на основе соотношения скорректированной по времени скорости активации единственного или каждого целевого химического элемента и функции на основе скорректированных по времени скоростей активации эталонных химических элементов;

в) корректировка ослабления падающих рентгеновских лучей и гамма-излучения каждого целевого химического элемента в образце путем применения коэффициента ослабления для создания значения сигнала с поправкой на коэффициент ослабления; и

д) умножение значения сигнала с поправкой на коэффициент затухания на константу нормирования.

10. Способ по п.9, в котором коэффициент ослабления определяется экспериментально путем измерения сигнала гамма-излучения от образцов различной массы, содержащих известные концентрации целевого химического элемента, или расчетным путем с использованием общедоступных коэффициентов ослабления гамма-излучения.

11. Способ по п.10, в котором константа нормирования определяется экспериментально путем сравнения значений скорректированного значения сигнала с коэффициентом затухания и известной массы единственного или каждого целевого химического элемента во множестве образцов, предпочтительно константа нормирования представляет собой градиент линии тренда на графике зависимости скорректированного на затухание сигнала от массы целевого химического элемента.

12. Способ по любому из пп.1-11, в котором единственный или каждый целевой химический элемент имеет пороговую энергию реакции ниже 10 МэВ, и в число по меньшей мере двух эталонных химических элементов входят один элемент из Вг (бром), или Ег (эрбий), или Ig (иридий) и Tb (тербий), или в котором единственный или каждый целевой химический элемент имеет пороговую энергию реакции, составляющую от 10 до 14 МэВ, и в число по меньшей мере двух эталонных химических элементов входят один элемент из Ge (германий) или Pd (палладий), или Rb (рубидий) и Tb (тербий).

13. Система гамма-активационного анализа, предназначенная для определения концентрации одного или нескольких целевых химических элементов в образце и содержащая:

а) источник рентгеновского излучения, пригодный для получения тормозного рентгеновского излучения;

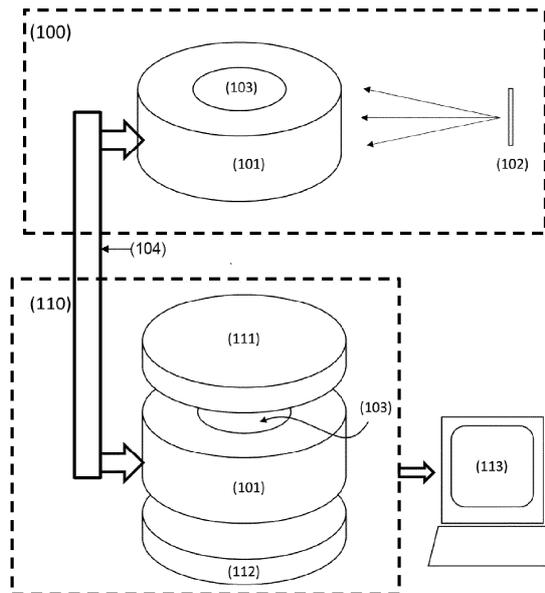
б) систему обнаружения гамма-излучения;

в) вычислительное устройство,

при этом во время работы образец и эталонный материал, содержащие по меньшей мере два эталонных химических элемента, которые проявляют отличающиеся друг от друга изменения скорости ак-

тивации в предварительно определенном диапазоне конечной энергии рентгеновского излучения, подвергаются одновременному облучению с применением источника рентгеновского излучения для облучения тормозным рентгеновским излучением перед подачей в систему обнаружения гамма-излучения, причем интенсивность обнаруженного гамма-излучения активированных (возбужденных) тормозным рентгеновским излучением ядер от единственного или каждого целевого химического элемента, присутствующего в облучаемом образце, и по меньшей мере двух эталонных химических элементов определяют и направляют в вычислительное устройство, при этом вычислительное устройство определяет концентрацию единственного или каждого целевого химического элемента в образце посредством корректировки интенсивности обнаруженного гамма-излучения от единственного или каждого целевого химического элемента, присутствующего в облучаемом образце, вследствие различий в конечной энергии и интенсивности тормозного рентгеновского излучения в зависимости от интенсивности обнаруженного гамма-излучения по меньшей мере от двух эталонных химических элементов, где для корректировки интенсивности обнаруженного гамма-излучения единственного или каждого целевого химического элемента используются калибровочные измерения интенсивности обнаруженного гамма-излучения из образца, содержащего известную концентрацию целевого химического элемента, и, по меньшей мере двух эталонных химических элементов, при этом калибровочные измерения повторяются с изменением конечной энергии тормозного рентгеновского излучения, и при этом по меньшей мере два эталонных химических элемента отличаются от единственного или каждого целевого химического элемента.

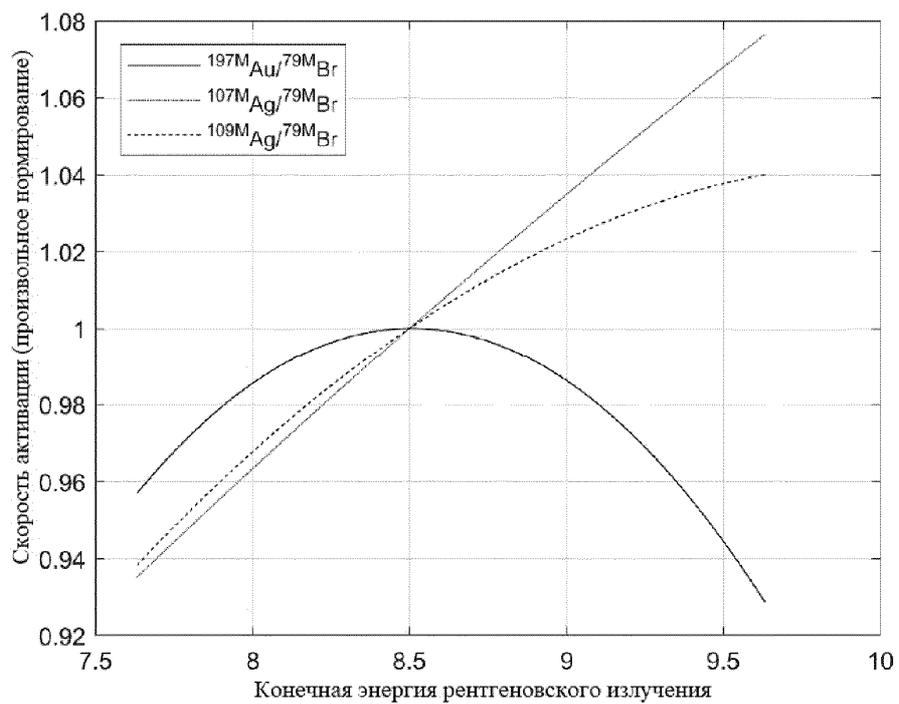
14. Система гамма-активационного анализа по п.13, в которой единственный или каждый целевой химический элемент имеет пороговую энергию реакции ниже 10 МэВ, и в число по меньшей мере двух эталонных химических элементов входят один элемент из Вг (бром), или Ег (эрбий), или Іг (иридий) и Тб (тербий), или единственный или каждый целевой химический элемент имеет пороговую энергию реакции, составляющую от 10 до 14 МэВ, и в число по меньшей мере двух эталонных химических элементов входят один элемент из Ge (германий) или Pd (палладий), или Rb (рубидий) и Tb (тербий).



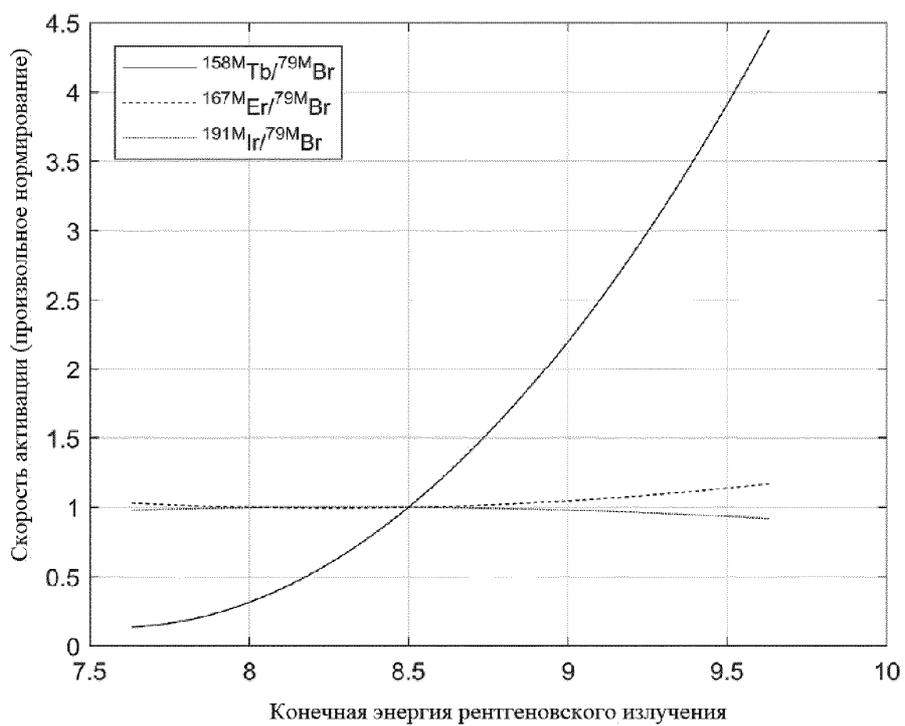
Фиг. 1

Целевой элемент	Содержание (%)	Реакция	Порог (МэВ)	Продукт	Период полураспада	Интерференция	Распадное излучение
¹⁴ N	99,636	(g,n)	10,553	¹³ N	9,96 мин		511,0 (199,6%)
²⁷ Al	100	(g,n)	13,286	^{26m} Al	6,34 сек		511,0 (200,0%)
³¹ P	100	(g,n)	12,311	³⁰ P	2,50 мин		511,0 (199,7%)
³⁵ Cl	75,76	(g,n)	12,645	³⁴ Cl	1,53 сек		511,0 (199,8%)
³⁹ K	93,2581	(g,n)	13,078	³⁸ K	7,64 мин		511,0 (199,1%) 2167,5 (99,9%)
⁵⁴ Fe	5,845	(g,n)	13,378	⁵³ Fe	8,51 мин		377,9 (42,0%) 511,0 (194,0%)
⁶³ Cu	69,15	(g,n)	10,864	⁶² Cu	9,67 мин		511,0 (195,7%)
⁷⁶ Ge	7,73	(g,n)	9,568	^{75m} Ge	47,70 сек		139,7 (39,5%)
⁷⁸ Se	23,77	(g,n)	10,66	^{77m} Se	17,36 сек		161,9 (53,2%)
⁸⁰ Se	49,61	(g,n)	10,01	^{79m} Se	3,92 мин		95,7 (9,62%)
⁷⁹ Br	50,69	(g,n)	10,688	⁷⁸ Br	6,45 мин	Присутствует	511,0 (185,0%) 613,7 (13,6%)
⁷⁹ Br	50,69	(g,g)	-	^{79m} Br	4,86 сек		207,2 (76,3%)
⁸⁷ Rb	27,83	(g,n)	10,478	^{86m} Rb	1,02 мин		556,1 (98,2%)
⁸⁹ Y	100	(g,g)	-	^{89m} Y	15,66 сек		909,0 (99,2%)
⁹⁰ Zr	51,45	(g,n)	12,556	^{89m} Zr	4,16 мин		587,8(89,6%)
⁹² Mo	14,53	(g,n)	13,325	^{91m} Mo	1,08 мин		511,0 (88,0%) 652,9 (48,2%) 1508,0 (24,2%)
¹⁰⁶ Pd	26,46	(g,n)	9,436	^{107m} Pd	21,30 сек		214,9 (68,7%)
¹¹⁰ Pd	11,72	(g,n)	9,005	^{109m} Pd	4,69 мин		188,9 (56,0%)
¹⁰⁷ Ag	51,839	(g,g)	-	^{107m} Ag	44,30 сек		93,1 (4,67%)
¹⁰⁹ Ag	48,161	(g,n)	9,185	¹⁰⁸ Ag	2,38 мин		633,0 (1,76%)
¹⁰⁹ Ag	48,161	(g,g)	-	^{109m} Ag	39,60 сек		88,0 (3,70%)
¹²³ Sb	42,79	(g,n)	9,126	^{122m} Sb	4,19 мин	Присутствует	61,4 (55,0%) 76,1 (23,0%)
¹³⁸ Ba	71,698	(g,n)	9,273	^{137m} Ba	2,55 мин		661,7 (89,9%)
¹⁴⁰ Ce	88,45	(g,n)	9,954	^{139m} Ce	54,80 сек	Присутствует	754,2 (92,0%)
¹⁴² Pr	100	(g,n)	9,396	¹⁴⁰ Pr	3,39 мин		511,0 (102,0%)
¹⁴² Nd	27,152	(g,n)	10,585	^{141m} Nd	1,03 мин	Присутствует	756,5 (91,5%)
¹⁴⁴ Sm	3,07	(g,n)	10,52	¹⁴³ Sm	8,75 мин	Присутствует	511,0 (89,8%)
¹⁴⁴ Sm	3,07	(g,n)	11,274	^{143m} Sm	1,10 мин	Присутствует	754,4 (90,1%)
¹⁵⁹ Tb	100	(g,n)	8,243	^{158m} Tb	10,70 сек		Рентгеновское излучение
¹⁶⁸ Er*	26,978	(g,n)	7,979	^{167m} Er	2,27 сек		207,8 (42,4%)
¹⁸⁰ Hf*	35,08	(g,n)	7,763	^{179m} Hf	18,67 сек	Присутствует	214,3 (95,3%)
¹⁸⁴ W*	30,64	(g,n)	7,721	^{183m} W	5,20 сек		99,1 (8,14%) 107,9 (18,9%) 160,5 (5,12%)
¹⁸⁶ W	28,43	(g,n)	7,39	^{185m} W	1,67 мин		131,6 (4,33%) 173,7 (3,26%)
¹⁹² Ir	37,3	(g,g)	-	^{192m} Ir	4,90 сек		129,4 (26,5%)
¹⁹⁷ Au	100	(g,g)	-	^{197m} Au	7,73 сек		279,0 (70,9%)
²⁰⁴ Pb	1,4	(g,n)	9,22	^{203m} Pb	6,21 сек		825,3 (71,6%)

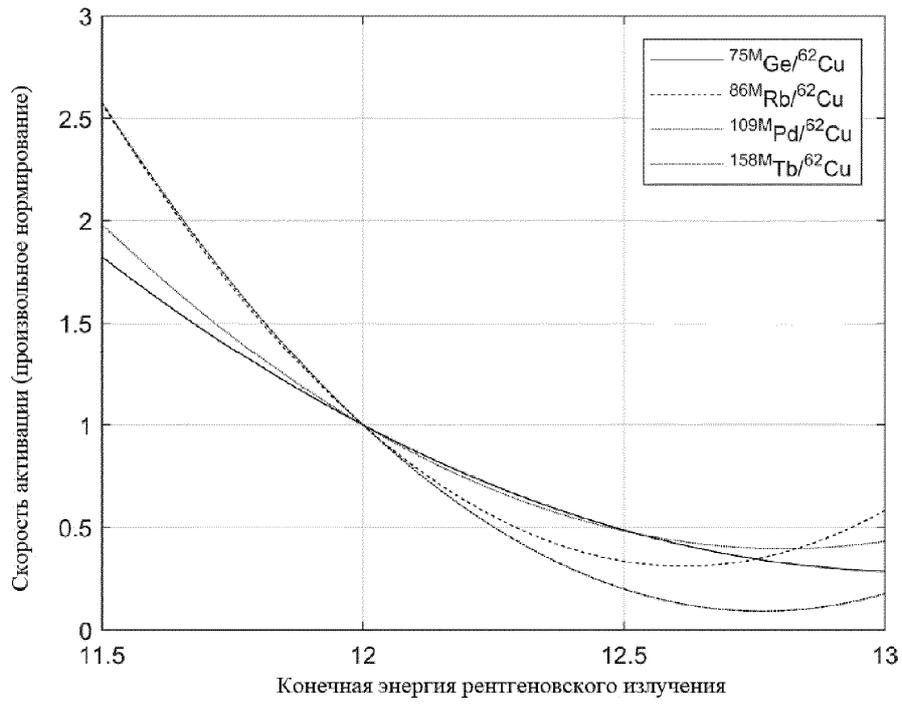
Фиг. 2



Фиг. 3



Фиг. 4



Фиг. 5

