

АКАДЕМИЯ НАУК УКРАИНЫ

ИНСТИТУТ ЯДЕРНЫХ ИССЛЕДОВАНИЙ

На правах рукописи

ЛЮБИНСКИЙ Николай Николаевич

УДК 539.172.6

ИСПОЛЬЗОВАНИЕ ЯДЕРНЫХ РЕАКЦИИ ДЛЯ ОПРЕДЕЛЕНИЯ КОНЦЕНТРАЦИИ
И НУКЛИДНОГО СОСТАВА АЗОТА АКТИВАЦИОННЫМ МЕТОДОМ

Специальность 01.04.16 - физика ядра и элементарных частиц

А В Т О Р Е Ф Е Р А Т
диссертации на соискание ученой степени
кандидата физико-математических наук

Научный руководитель
д.ф.-м.н. Меленевский А.Э.

Киев 1993

Официальные оппоненты: доктор физико-математических наук
РУДЧИК Адам Тихонович
(ИЯИ АН Украины)

кандидат физико-математических наук
ПОЯРКОВ Владимир Алексеевич
(Киевский Университет им. Т.Г.Шевченко)

Ведущая организация: Институт прикладной физики, г.Сумы

ЛНБ України ім.В.Стефаніка



00815491 (S)

Защита состоится "23" сентября 1993 г.
в 14.00 часов на заседании Специализированного совета
Д.016.03.01 при Институте ядерных исследований АН Украины
по адресу: Киев, пр.Науки, 47.

Автореферат разослан "21" августа 1993г.

Ученый секретарь
специализированного Совета

Чеснокова В.Д.

ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

Актуальность. Работа представляет собой дальнейшее совершенствование ядерно-физических методик по определению содержания азота в биологических образцах.

Такие методики незаменимы при выполнении масштабных селекционных программ, направленных на создание продуктивных высокобелковых сортов зерновых культур. Из-за политепного характера признака высокой белковости на начальных этапах отбора необходимо просматривать такое количество исходных форм, с которыми не могут справиться традиционные биохимические методики (метод Кьельдаля, например). Выход из этой ситуации представляет применение физических и, особенно, ядерно-физических методик, обладающих высокой производительностью при сохранении приемлемой точности получаемых результатов.

Выбор конкретной методики определяется с одной стороны типом решаемой задачи, а с другой стороны - имеющимися экспериментальными возможностями.

Проведенный обзор литературных данных и наши экспериментальные результаты указывают на целесообразность и перспективность использования ядерных реакций (d, p) на ядрах атомов элементов из состава растительного образца для определения содержания азота. Наряду с несомненными достоинствами методики, основной на использовании ядерной реакции $^{14}\text{N}(d_1)^{16}\text{N}$, имеются проблемы, без решения которых получение корректных результатов затруднено. Главная из этих проблем - наличие в составе растительных образцов так называемых примесных или солевых элементов (Na, P, S, Cl, K, Ca). Протекание ядерной реакции (dp) на ядрах этих элементов может приводить к некорректному вкладу в регистрируемые протонные спектры, и, как следствие, к искажению получаемых результатов.

Предложено дополнить прямую методику определения концентрации азота, основанную на ядерной реакции $^{14}\text{N}(dp)^{16}\text{N}$, активационной методикой на основе ядерной реакции $^{15}\text{N}(dp)^{16}\text{N}$. Соединение прямой и активационной измерительных методик кроме решения главной задачи - экспрессного учета влияния солевых элементов на получаемый результат, позволяет получить информацию о нуклидном составе азота, а также об изменении концентрации азота по глубине зерновки. В основу работы положены результаты исследований, проведенных в

период 1980-1990 гг. в рамках ряда тем по заказу ГКНТ СССР, соисполнителем и ответственным исполнителем которых был автор.

Цель работы. Целью данной работы было изучение возможности использования ядерной реакции (dp) на изотопе $N-15$ атомов азота естественной смеси из состава растительных образцов, выбор оптимальных условий выполнения измерений, создание универсальной высокопроизводительной измерительной системы и апробации предложенных методик в действующих селекционных программах.

Для достижения поставленных целей

- проведено изучение некоторых особенностей протекания ядерной реакции $^{15}N(dp)^{16}N$, и разработана методика проведения измерений на толстых мишенях;

- изучены мешающие факторы и выбраны оптимальные условия проведения анализов;

- разработана универсальная измерительная система, объединяющая прямую и активационную методики;

- предложен способ выявления метки "тяжелого" азота при использовании метода меченых атомов с меткой ^{16}N ;

- предложена методика оценки изменения концентрации азота по глубине зерновки;

- проведена апробация разработанных методик совместно с исполнителями селекционных программ.

Новизна, научная и практическая ценность.

1. Впервые предложено использовать реакцию $^{15}N(dp)^{16}N$ для определения концентрации азота.

2. В интервале энергий дейтронов 4,5 - 13,6 МэВ измерена энергетическая зависимость интегрального выхода нуклида ^{16}N в ядерной реакции $^{15}N(dp)^{16}N$ и мешающей ядерной реакции $^{16}O(d\alpha)^{16}N$.

3. Оценена абсолютная величина выхода нуклида ^{16}N в ядерной реакции $^{15}N(dp)^{16}N$ при энергии дейтронов 13,6 МэВ.

4. Доказана возможность использования ядерной реакции $^{16}O(dn)^{17}F$ для оценки изменения содержания кислорода в исследуемых образцах.

5. Реализована методика измерения отношения концентраций нуклидов ^{14}N и ^{15}N для использования в методе "меченых" атомов с меткой "тяжелого" азота.

6. Разработана методика оценки изменения концентрации азота по глубине зерновки.

7. Создана высокопроизводительная измерительная система для определения концентрации азота, изотопного состава его и распределения концентрации по глубине зерновки.

Практическая ценность. Объединение прямой и активационной измерительных методик на основе ядерных реакций $^{14}\text{N}(dp)^{15}\text{N}$ и $^{15}\text{N}(dp, ^{16}\text{N})$ позволило устранить недостатки, присущие прямой методике, сохранив в значительной степени такие ее важные свойства, как высокая экспрессность и простота пробоподготовки. Применение активационной методики повысило достоверность и надежность получаемых результатов.

Созданная на базе предложенной методики измерительная система позволяет выполнять большой объем анализов в рамках масштабных селекционных программ, что может вывести их на качественно новый уровень. Описанная методика может быть применена при внедрении интенсивных технологий в растениеводстве.

Предложенная методика оценки распределения азота по глубине зерновки позволяет ввести дополнительные критерии отбора по генотипическому признаку высокой белковости растений и, благодаря этому, сокращает сроки выведения новых высокобелковых сортов.

Апробация полученных результатов. Результаты исследований, положенных в основу предлагаемой работы, были представлены на 30, 35, 36, 38, 39 Сессиях по ядерной спектроскопии, на II Всесоюзной конференции по сельхозрадиологии (Обнинск, 1984 г.), докладывались автором на III Всесоюзном совещании по анализу на микропучках. Основные результаты отражены в 12 публикациях, по данной теме защищено 1 авторское свидетельство.

Объем и структура работы. Диссертация состоит из введения, 4 глав и заключения и составляет 96 страниц печатного текста (в том числе 16 рисунков и 11 таблиц). Список литературы включает 57 названий. Приложено 2 акта использования результатов НИР.

СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ

Во введении дается обоснование актуальности и предложенной темы, сформулированы цели и решаемые в процессе работы задачи. Дается описание структуры диссертации. Сформулированы основные положения, выносимые на защиту.

В первой главе рассмотрены свойства растительных образцов, как объекта исследования, отмечается наличие факторов, являющихся

мешающими при использовании ядерно-физических методик. Дается обзор представленных в литературе методик. Производится их разделение по основным признакам на 2 группы: прямые методы, активационные методы. Делается сравнительная оценка этих групп, и приведена краткая характеристика каждой из методик, отмечаются наиболее перспективные для целей селекции. Обосновывается выбор методик на основе использования ядерных реакций с дейтронами на ядрах элементов из состава биологических образцов. Показано, что разработка измерительной методики, использующей ядерные реакции, вызываемые дейтронами, на ядрах ^{14}N , ^{15}N из состава естественной смеси изотопов в биологических образцах, позволяет наиболее полно реализовать такие основные преимущества ядерно-физических методик, как высокая производительность при выполнении анализов, простота пробоподготовки. А объединение прямой и активационной методик в одной измерительной системе позволяет минимизировать искажающий вклад мешающих элементов, повысить точность и надежность получаемых результатов, расширить возможности применения измерительной системы.

В заключение этой главы делается вывод о перспективности использования при определении содержания азота ядерных реакций под действием дейтронов при условии дополнения прямой измерительной методики активационной и решении связанных с этим методических задач.

Во второй главе изучаются возможности предложенной для определения содержания азота ядерной реакции $^{15}\text{N}(d,p)^{16}\text{N}$. Отмечается, что возникающий в процессе дейтронной активации радионуклид ^{16}N имеет наибольшую из всех возможных граничную энергию бета-распада - 10,44 Мэв. Идентификацию этого радионуклида можно вести также с помощью регистрации высоко-энергетических γ -квантов, испускаемых при разрядке высоковозбужденных состояний. Однако, в реальных условиях работы ускорителя наличие мощного γ -фона делает предпочтительным использование первой возможности - регистрации продуктов β^- -распада. Необходимо при этом иметь в виду малую концентрацию идентифицируемого нуклида ^{15}N в изучаемых образцах, а также возможность образования радионуклида ^{16}N в конкурирующих ядерных реакциях, какими являются $^{18}\text{O}(d,\alpha)^{16}\text{N}$ и $^{6}\text{O}(np)^{16}\text{N}$.

Для выяснения оптимальных условий проведения измерений была

изучена зависимость выхода радионуклида ^{16}N в области энергий 4,5 - 13,6 Мэв. Изменение энергий в указанном энергетическом диапазоне осуществлялось с помощью набора поглотителей. Регистрация наработанного радионуклида ^{16}N осуществлялись сцинтилляционным β -спектрометром на основе кристалла стильбена ϕ 80x40 и фотумножителя ФЭУ-97. Были приготовлены насыпные мишени из меламина ($\text{C}_3\text{H}_6\text{N}_4$) и лактозы ($\text{C}_6\text{H}_{12}\text{O}_{12}$) естественного изотопного состава. Для нормирования использовалась регистрация протонов в из ядерной реакции (d,p) на ядрах атомов мишени и поглотителя. Производилась запись посекундного числа протонных отсчетов в памяти информационно-вычислительного комплекса ИВК. Дейтронный пучок мониторировался с помощью учета аннигиляционных гамма-квантов из β^+ -распада радионуклида ^{13}N , образовавшегося в ядерной реакции $^{12}\text{C}(d,n)^{13}\text{N}$. Были проведены оценки энергетической зависимости их выхода при использовании графитовой мишени. Показано, что можно пренебречь искажающими вкладами ядерных реакций $^{16}\text{O}(n,p)^{16}\text{N}$ и $^{14}\text{N}(n,2n)^{13}\text{N}$.

Из полученных результатов делается вывод о том, что с ростом энергии в изучаемом энергетическом интервале выход радионуклида ^{16}N в ядерной реакции $^{16}\text{N}(d,p)^{16}\text{N}$ растет быстрее, чем в ядерной реакции $^{18}\text{O}(d,\alpha)^{16}\text{N}$. И это различие достигает максимума при наиболее возможной в наших условиях энергии дейтронов 13,6 Мэв.

Была произведена оценка абсолютной величины выхода радионуклида ^{16}N при энергии дейтронов 13,6 Мэв. Измерения выполнялись с помощью стандартного $\text{Ge}(\text{Li})$ -детектора ДГДК-80. Измерялись γ -кванты с энергией 1,765 Мэв, соответствующие γ -переходом из состояния 8,872 Мэв в состоянии 7,117 Мэв конечного ядра ^{16}O . Вероятность заселения состояния 8,872 Мэв при β^- -распаде ^{16}N оценивалась величиной $(1,0 \pm 0,2)\%$. Эффективность регистрации γ -детектора оценивалась по измерениям на стандартном образцовом источнике ^{60}Co . А энергетическая зависимость эффективности регистрации была определена с помощью дополнительных измерений с использованием ядерной реакции $^{23}\text{Na}(d,p)^{24}\text{Na}$ по сравнению 2 пиков 1,369 Мэв и 2,754 Мэв.

Для создания оптимальных условий проведения измерений были предприняты усилия по снижению уровня фоновых загрузок γ -излучения. С этой целью были внесены изменения в систему транспортировки ионного пучка. Эти изменения в основном сводились к тому, что

коллимирующие элементы и системы прерывания были максимально разнесены с облучаемой мишенью. Кроме того, реакционная камера была изготовлена из конструкционных материалов, имеющих малое значение Z (алюминий, тефлон). Для устранения адсорбированных в материале мишени газов и воды предусмотрен подогрев мишеней с помощью электронагревателя непосредственно в облучательной камере.

Получение максимального выхода радионуклида ^{16}N и, следовательно, минимальной статистической ошибки обеспечивается правильным подбором соотношения временных интервалов. Это достигается при равенстве времени активации и времени измерений и при минимальном времени отстоя. При периоде полураспада $T_{1/2}=7\text{с}$ условия насыщения достигаются через 60 с, а за 30 с навигируется около 85% нуклидов ^{16}N . Поэтому было выбрано $t_{\text{ак}}=t_{\text{изм}}=29\text{с}$ при времени отстоя 2 с. Минимизация времени активации снижает вклад сопутствующих радионуклидов.

Большое внимание уделено проблемам мониторингования дейтронного пучка, вызывающего активацию образцов. Мониторирование осуществляется с помощью регистрации протонов из ядерной реакции (d,p) на ядрах атомов O и ^{18}O из состава мишеней и поглотителей. Оценено влияние нестабильности дейтронного тока при посекундной записи показаний протонных спектрометров на величину ошибки в оценке приведенного дейтронного потока и, следовательно, выхода продуктов активации. Так, ошибка в величине приведенного дейтронного потока 1,5% достигается при колебании величины тока дейтронного пучка на 20%. Такая величина заведомо обеспечивается имеющимися на ускорителе системами стабилизации.

Поскольку изменение содержания азота происходит главным образом за счет изменения содержания кислорода, а основным мешающим фактором, как уже отмечалось, является наличие тяжелого кислорода ^{18}O , необходимо осуществлять экспрессный контроль за изменением концентрации кислорода. Такой контроль можно вести, используя амплитудный анализ суммарного бета-спектра в интервале энергий 4,270 - 4,601 МэВ, где 4,270 - граничная энергия β^- -распада ^{16}N в первое возбужденное состояние ^{16}O , а 4,601 МэВ - граничная энергия β^- -распада ^{19}O . Из-за различия периодов полураспада форма спектра будет меняться, что позволяет дать оценку исходному количеству кислорода. Другой возможный метод учета основан на использовании различия в изменении дифференциальных сечений реакции (d,p) на ядрах

атомов O и O . Однако, первый метод имеет недостаточную экспрессность, а второй - малую точность. Поэтому для решения указанной задачи было предложено использовать ядерную реакцию $^{16}O(d,n)^{17}F$. Показано, что в данных экспериментальных условиях свыше 90% зарегистрированных в совпадении аннигиляционных γ -квантов отвечают β^+ -распаду образовавшегося в этой ядерной реакции радионуклида ^{17}F . Измерения проводились на модельных образцах с составом, близким к составу растительных образцов. Регистрация γ - γ -совпадений осуществлялась с помощью сцинтилляционного спектрометра совпадений.

Были определены пределы обнаружения идентифицируемого нуклида ^{16}N . Как известно, для выбранного доверительного уровня α предел обнаружения L_p , т.е., минимальная концентрация определенного нуклида, при котором сигнал с надежностью $p(\alpha)$ превышает фон, имеет вид

$$L_p = \bar{K} \text{Sat}(\alpha, n-1),$$

где \bar{K} - эффективность регистрирующего устройства; S_a - выбросное среднеквадратичное отклонение; $t(\alpha, n-1)$ - коэффициент Стьюдента. Оцененный таким образом предел обнаружения для подготовленных модельных образцов составил $5 \times 10^{-2}\%$ естественной смеси изотопов азота при $p=0,95$, что соответствует концентрации нуклида ^{16}N около $2 \times 10^{-4}\%$. Понижения этой величины можно достичь за счет повышения точности установки измеряемых образцов в β -спектрометре.

В третьей главе описана универсальная, автоматизированная измерительная система для определения концентрации и изотопного состава азота в биологических образцах растительного происхождения. Указанная система естественным образом объединяет две измерительные методики: прямую и активационную. На первом этапе определяется относительное содержание азота ^{14}N с помощью ядерной реакции $^{14}N(d,p)^{15}N$ и одновременно происходит активация входящего в состав образца нуклида ^{15}N в ядерной реакции $^{15}N(d,p)^{16}N$. На втором этапе производится оценка наработанного радионуклида ^{16}N .

В состав измерительной системы входят: узел формирования и транспортировки ионного пучка, узел загрузки (разгрузки), узел облучения и прямых измерений, узел измерения наведенной активности, измерительно-управляющий комплекс. Для узла формирования ионного

пучка разработана конструкция системы дистанционно-регулируемых диафрагм. Предусмотрено несколько устройств прерывания пучка. С помощью этих систем осуществляется оперативный вывод, и на мишени формируется дейтронный пучок необходимой конфигурации и плотности. Конструкционное выполнение диафрагм и прерывателей пучка позволяет осуществлять оперативную диагностику ионного пучка вдоль всей его траектории. Узел формирования отделен от остальной части измерительной системы вакуумной перегородкой, и его объем составляет одно целое с вакуумным объемом ускорителя. Такое секционирование вакуумных объемов при работе с воздушно-сухими реплетительными образцами существенно уменьшает непроизводительный расход ускорительного времени, связанный с откачкой объемов. Узел загрузки аналогичен по конструкции узлу разгрузки и обеспечивает разовую зарядку 500 образцов, помещенных в кассету (5 рядов по 100 образцов в каждом ряду). В узле прямых измерений производится определение концентрации азота с помощью ядерной реакции $^{14}\text{N}(d,p)^{15}\text{N}$ с одновременной наработкой в процессе активации радионуклида ^{16}N . Приемно-сканирующее устройство обеспечивает приемку очередного контейнера с материалом образца, его фиксацию и облучение в нужном режиме в зависимости от выбранной программы. Детектирующая система узла прямых измерений состоит из 10 сцинтилляционных спектрометров, которые регистрируют продукты ядерных реакций, протекающих при облучении образца пучком ускоренных дейтронов. 4 детектора под углом 165° и 2 детектора под углом 135° регистрируют протоны из ядерной реакции (dp) на азоте, а 4 детектора - под углами 120° и 150° являются нормировочными. Группа детекторов 135° служит для определения величины аддитивной добавки за счет наличия в образце примесей зольных элементов. А с помощью дополнительной группы нормировочных детекторов (150°) контролируется изменение соотношения C и O в образцах.

Выделение требуемых областей суммарного протонного спектра осуществляется подбором толщин кристалла и поглотителя перед каждым из детекторов. Величины телесных углов каждой группы спектрометров подбирались таким образом, чтобы обеспечить рабочие загрузки 10^3 и 3×10^3 1/с в азотных и нормировочных каналах, соответственно. В качестве сцинтилляторов использовались кристаллы CsJ(TL). Их выбор обусловлен малой гигроскопичностью этого материала и низким сечением активации быстрыми дейтронами.

Режим прямых измерений имеет 2 продолжительности единичных циклов - 3 с (экспрессный режим) и 28 с (активационный режим). В первом случае происходит только определение концентрации ^{14}N , и образец транзитом, минуя узел активационных измерений, поступает на разгрузку, а во втором - образец устанавливается в положении измерений в активационном узле, где определяется концентрация ^{16}N .

В узле активационных измерений устройство фиксации образца конструктивно сопрягалось с бета-спектрометром и спектрометром γ - γ -совпадений. В бета-спектрометре был использован кристалл стильбена, а для гамма-детекторов - пластические сцинтилляторы. К устройству фиксации предъявлялись особые требования, так как неточность установки образца дает главный вклад в ошибку измерений. Система прижимов-фиксаторов обеспечивала точность $\pm 0,1$ мм.

Отбор фотоумножителей для всех спектрометрических трактов производился по критерию амплитудной стабильности не хуже 1% при частотных нагрузках 10^5 1/с. Использовались стандартные электронные блоки - усилителей предусилителей, интегральных дискриминаторов, быстрых усилителей и время-амплитудных конверторов.

Предусмотрен контроль стабильности работы спектрометрических трактов посредством засветки каждого фотоумножителя с помощью светодиодов, запитываемых генератором стабильной амплитуды. Дополнительная засветка в спектрометрических трактах предусмотрена также в время перекрытия пучка и других возможных пауз в измерительной программе, с целью повышения стабильности работы этих трактов.

Узел разгрузки и, соответственно, разгрузочная кассета по конструкции аналогичны разгрузочным. Это позволяет сохранять соответствие нумерации образцов до и после анализа. Такая сохранность необходима при проведении дополнительных повторных анализов, или если требуется возврат анализируемых образцов селекционеру.

Вся спектрометрическая информация в нормализованном виде поступает в информационно-управляющий комплекс (ИУК), где производится ее обработка, получение конечных результатов анализа, а также выработка соответствующих команд управления при работе в автоматическом режиме при выбранной программе. Комплекс сформирован на базе ЭВМ МЭРА-КАМАК 1300. А команды управления вырабатываются в блоке управления, который состоит из двух субблоков. Один - в

стандарте КАМАК - расположен в измерительном помещении и осуществляет непосредственное управление от ИБК. Другой находится в реакционном зале и предназначен для управления системой в ручном режиме при выполнении процесса настройки. При работе команды первого субблока имеют приоритет перед аналогичными командами второго субблока.

Измерительная система имеет две программы работы: режим прямых измерений (RR) и режим полных измерений, включающий активационные (RA). В первой - экспрессно (за 3 с) проанализированный в узле прямых измерений образец транзитом через узел активационных измерений поступает на разгрузку. Во второй - время работы узла прямых измерений составляет 29 с, а затем образец фиксируется в узле активационных измерений, которые также выполняются в течение 29 с. В процессе прямых измерений предусмотрена работа в колебательном режиме, но возможен анализ образца в одно из стационарных положений "верх", "середина", "низ", а после поворота образца в каретке-держателе на 180° производится анализ со стороны второй его поверхности. Во время измерений ведется посекундная запись информации от каждого спектрометрического канала с одновременным сравнением с массивом данных, записанных в памяти ИБК в процессе настройки системы. При получении расхождений, превышающих заданную величину, программа делает паузу для вмешательства оператора. После каждого 100-го образца (конец ряда в кассете) производится контрольная обработка одного образца по полной программе. После каждого 10-го вместо исследуемых образцов облучаются эталонные, и также производится сравнение с записанными предварительно в памяти ИБК значениями.

Измеряемая величина - концентрация азота ^{14}N - определяется как отношение суммарных показаний группы азотных детекторов 165° к показаниям нормировочных каналов 120° после вычитания усредненной величины аддитивной добавки от зольных элементов, полученной предварительно в процессе настройки.

При работе по полной программе - режим активации - на первом этапе (прямые измерения) производится оценка однородности условий активации по введенному при настройке критерию. При выполнении этого критерия через 2 с после завершения активации начинают работу счетчики активационных каналов. В течение 28 с через каждые 7 с записываются промежуточные показания. Правильность работы

активационного узла оценивается по вычисленным отношениям первого 7-секундного замера к трем последующим. Результат считается корректным (после исправления на экспоненту и временной задержки), если полученные отношения отличаются на величину не более двойной суммарной статистической ошибки. Вычисляется число γ - γ -совпадений с помощью коэффициента, вводимого при настройке. Число этих совпадений и число отсчетов β -канала нормируется на величину приведенного дейтронного потока. Оценивается и вычитается вклад в число β -распадов радионуклида ^{16}N , образовавшегося в ядерной реакции $^{16}\text{O}(\text{d}\alpha)^{16}\text{N}$. Затем путем сравнения со стандартными образцами оценивается концентрация азота в исследуемом образце. Эта величина сравнивается также с данными прямых измерений. При наличии расхождений, превышающих суммарную ошибку измерений, их следует приписать наличию аддитивной добавки за счет сопутствующих азотных элементов. Это требует введения соответствующего критерия, определяемого заново.

Настройка измерительной системы производится в два этапа. На первом - производится настройка всех спектрометрических каналов, начиная с канала γ - γ -совпадений. Процедура поканальной настройки сводится к регулировке напряжения питания фотоумножителей. На следующем этапе проводились градуировочные измерения с помощью набора настроечных образцов. Эти образцы представляли собой гомогенные смеси триптидина с лактозой и графитом. С помощью таких смесей моделировали весь возможный при работе с растительными образцами диапазон изменений концентрации определяемого азота. Были оценены предельно определяемые концентрации азота, которые составили (при токе дейтронного пучка 0,2 мкА и $p = 0,95$) для прямой методики при времени измерений 3 с $(3-5) \times 10^{-2}\%$ и для активационной $(7-10) \times 10^{-2}\%$ (время измерений 28 с).

Для оценки вариации получаемых результатов вследствие изменения величины аддитивной добавки проводились дополнительные измерения на настроечных образцах-смесях с добавлением сопутствующих элементов. Показано, что в имеющемся диапазоне изменений этих концентраций величина отношения показаний двух групп азотных детекторов ($165^\circ / 135^\circ$) в 3 раза чувствительнее к этим изменениям, чем нормированная величина показаний для детекторов рабочей группы (165°). Таким образом, вклад в результаты измерений из-за вариации сопутствующих элементов равномерно оценивать по отношению показаний двух групп

азотных детекторов $165^{\circ}/135^{\circ}$. С помощью набора градуировочных настроечных образцов была оценена величина случайной составляющей ошибки анализа, которая составила 1,7% для прямой методики и 2,0% - для активационной ($p = 0,95$). Оценка величины систематической составляющей ошибки производилась посредством пересчета данных ядерно-физических измерений в абсолютные величины с помощью сравнения с данными измерений, дающих абсолютные значения измеряемых величин (в нашем случае - биохимических). Для методики прямых измерений эта величина составила 0,16% (относительно массы углерода в образце), и 0,2% для активационной методики. Методика выполнения измерений (МВИ) аттестована метрологической службой АН Украины в соответствии с ГОСТ 8.505-54.

Четвертая глава посвящена возможным применениям предложенной активационной методики. Отмечаются широкие возможности ее при использовании в методе "меченых" атомов в качестве метки изотопа азота ^{15}N . Традиционно применяемые в этом случае методы масс-спектрометрии реализуются в два этапа: выделение элементного азота в газообразной форме по методу Кьельдаля, а затем уже раздельная оценка изотопов азота с помощью масс-спектрометрии. Это осложняет широкое применение данного метода из-за высокой трудоемкости процессов пробоподготовки и самих анализов. К этому следует добавить низкую чувствительность собственно методов масс-спектрометрии, что требует создания высокой концентрации метки в образце. Предложенный нами способ основан на определении отношения концентрации ^{15}N , ^{14}N . Достигнутая производительность измерительной системы - 1400 1/сут, а пределы обнаружения $(2,6 - 3,8) \times 10^{-4}\%$ позволяют применять предложенную методику в масштабных исследовательских программах, использующих метод "меченых" атомов с меткой тяжелого азота. Одним из возможных направлений таких исследований может быть изучение тонкой структуры механизмов азотного питания растений. Совместно с ИФРИГ был поставлен опыт по изучению особенностей поступления азота в растения, возможностей его усвоения и накопления, а также влияния на эти процессы наличия микроколичеств некоторых элементов (например, Li). Цель этого исследования - повышение общей урожайности и белковой продуктивности растений. Всего было проанализировано 500 образцов, представлявших собой гомогенизированный материал зерновок и вегетативной массы растений. Другой возможной областью применения

этой методики является внедрение интенсивных технологий возделывания зерновых, где требуется оперативное и точное определение количества и сроков внесения удобрений (в т.ч. азотных).

Информация о распределении концентрации азота по глубине зерновки является существенной при отборе растений по признаку повышенного содержания белка (его генотипической компоненте). Ранее нами предложен способ оценки изменения концентрации азота по глубине зерновки, позволяющий получать надежную информацию до глубины 450 мкм. При этом внутренние области зерновки, т.н. эндосперм, остаются информационно недоступными. Объединение в одной измерительной системе прямой и активационной методик позволяет решить указанную задачу. При работе прямой методики одновременно с получением результатов происходит активация под действием пучка дейтронов на всю глубину пробега дейтронов в материале зерновки (примерно 1,5 мм при имеющейся энергии дейтронов). Сравнение данных прямой и активационной методик по предложенному критерию

$$K = \frac{\text{прямые измерения (конц. аз. до 150 мкм)}}{\text{активационные измерения (конц. аз. до 1,5 мм)}}$$

позволяет отделять перспективные для селекции пищевых сортов формы (высокая концентрация азота во внутренних областях зерновки) от фуражных сортов, где много азота в наружных слоях зерновки. С помощью предложенной методики было проанализировано 1000 образцов контрастных по распределению концентрации азота сортов (пищевых и фуражных), предоставленных Украинским университетом аграрных наук. Отмечено, что такой аспект применения данной измерительной методики предоставляет новые возможности для селекции продуктивных высокобелковых сортов.

В заключении изложены основные результаты проделанной работы.

На защиту выносятся:

1. Активационная методика измерения концентрации азота с помощью ядерной реакции $^{15}\text{N}(\text{d}, \text{p})^{16}\text{N}$.
2. Установка экспрессного анализа концентрации азота в растительных образцах, включающая автоматизированное облучательное устройство, устройство транспортировки и формирования ионного пучка, систему регистрации продуктов ядерных реакций, систему управления и обработки информации. Производительность установки до

10 000 анализов в сутки.

3. Способ определения изотопной метки тяжелого азота ^{15}N методом измерения соотношения $^{15}\text{N}/^{14}\text{N}$.

4. Оценка распределения концентрации азота по глубине образца с использованием сравнительных данных прямой и активационной методики.

5. Результаты апробации предложенной методики.

Основные результаты диссертации опубликованы в следующих работах:

1. Кривошеев В.Г., Любинский Н.Н., Меленевский А.Э. Измерение распределения белка в зерне ядерным методом//Ядерная спектроскопия и структура атомного ядра//Тезисы докладов 30 совещания. Л. 1980, с.584.
2. А.с. 856064. Способ экспресс-отбора высокобелковых зерновок злаков. Любинский Н.Н., Меленевский А.Э., Немец О.Ф., Тихий В.А. 5с.
3. Любинский Н.Н., Меленевский А.Э., Немыкин В.И. Изучение эффективности индуцирования высокобелковых мутаций у озимой пшеницы с помощью мутагенов различной природы и ЛПЗ//Вторая Всесоюзная конференция по сельхозрадиологии. Тез.докл. т.3. Обнинск 1984, с.с. 16-17.
4. Любинский Н.Н., Меленевский А.Э., Немыкин В.И., Тихий В.А. Устройство для измерения содержания белка в средней пробе с помощью ядерной реакции $^{14}\text{N}(\text{d},\text{p})^{15}\text{N}$ //Вторая всесоюзная конференция по сельхозрадиологии. Тез.докл., т.3, Обнинск, 1984, с.с. 13-14.
5. Меленевский А.Э., Любинский Н.Н., Немыкин В.И., Тихий В.А. Ускоренное определение белка в селекционном материале//Вторая всесоюзная конференция по сельхозрадиологии. Тезисы докладов, т.3, Обнинск, 1984, с.с. 14-15.
6. Любинский Н.Н., Меленевский А.Э., Немыкин В.И., Тихий В.А. Применение ядерной реакции $^{14}\text{N}(\text{d},\text{p})^{15}\text{N}$ для определения содержания белка в пробах большой массы//Ядерная спектроскопия и структура атомного ядра. Тез.докл. 35 совещания - Л., 1985, с.500.
7. Меленевский А.Э., Любинский Н.Н., Немыкин В.И., Тихий В.А. Определение содержания азота в биобъектах методом дейтронной активации//Ядерная спектроскопия и структура атомного ядра. Тез.докл. 36 совещания - Л., 1986, с.535.
8. Меленевский А.Э., Любинский Н.Н., Немыкин В.И., Тихий В.А. Измерение распределения белка по глубине зерна с помощью реакций,

вызываемых дейтронами//Ядерная спектроскопия и структура атомного ядра. Тез.докл. 36 совещания - Л., 1986, с.536.

9. Виноградова Т.И., Любинский Н.Н., Меленевский А.Э., Немкин В.И. Ядерное экспрессное измерение изотопной метки ^{15}N в биологических образцах//Ядерная спектроскопия и структура атомного ядра. Тез.докл. 36 совещания - Л., 1986, с.567.

10. Любинский Н.Н., Меленевский А.Э., Немкин В.И. Многоэлементный анализ растительных образцов методом дейтронной активации//Ядерная спектроскопия и структура атомного ядра. Тез.докл. 39 совещания - Л., 1989, с.557.

11. Любарский В.А., Любинский Н.Н., Меленевский А.Э., Немкин В.И. Измерение выхода нуклида ^{16}N в ядерных реакциях, вызываемых дейтронами//Ядерная спектроскопия и структура атомного ядра. Тез.докл. 39 совещания - л., 1989, с.568.

12. Любинский Н.Н., Любарский В.А., Меленевский А.Э. Измерение изотопной метки ^{15}N в биологических образцах//Тез. докл. III Всесоюзного совещания по микроанализу на ионных пучках. Сумы, 1990, с.69.

13. Любинский Н.Н., Любарский В.А., Меленевский А.Э. Измерение распределения азота по глубине образца//Тез. докл. III Всесоюзного совещания по микроанализу на ионных пучках. Сумы, 1990, с.68.

ЛОБИНСКИЙ Николай Николаевич

ИСПОЛЬЗОВАНИЕ ЯДЕРНЫХ РЕАКЦИЙ ДЛЯ ОПРЕДЕЛЕНИЯ КОНЦЕНТРАЦИИ
И НУКЛИДНОГО СОСТАВА АЗОТА АКТИВАЦИОННЫМ МЕТОДОМ

(Автореферат диссертации на соискание ученой степени
кандидата физико-математических наук)

БФ 16769 Подписано в печать 07.06.1993 г.

Усл.-печ.л. 1 Тип.заказ N 100 Тираж 100

СКТБ с ЭП Института ядерных исследований АН Украины
252028, ГСП, Киев-28, проспект Науки, 47

466355

AB 27.970

AB 27.970