

Determination of the Content of Hf in Zirconium Alloys with using a Wide Band X-Ray Emission Filter

O.P. Omelnyk, V.V. Levenets*, A.Yu. Lonin, I.V. Shevchenko, A.O. Shchur

VNational Science Center “Kharkov Institute of Physics and Technology” NAS of Ukraine, 1, Akademichaskaya St., Kharkov, Ukraine, 61108; *e-mail: levenets@kipt.kharkov.ua

Recieved: April 07, 2018; Accepted: August 21, 2018

DOI: 10.17721/moca.2018.xx-xx

The possibilities of a non-destructive method of determination of the content of hafnium in zirconium alloys are studied. The method is based on excitation of the characteristic X-ray emission of the atoms of the object of interest, including the L-series of atom of Hf, by external beam of protons accelerated up to 2 MeV. The excited emission is modified by a wide band X-ray emission filter, which is made from pyrolytic graphite plates and measured by a Si-PIN detector. Optimal conditions for measurement of analytical signal were determined after experimental studying. It was shown that under the selected experimental conditions and the measurement time of 10 minutes, the detection limit of Hf in the zirconium matrix is equal 20 ppm. The ways for improving of the metrological characteristics of the technique in the presence of interfering elements are proposed. The content of hafnium and uniformity of its distribution in the cladding of nuclear fuel rod made from the alloy Zr1% Nb was determined.

Keywords: hafnium, zirconium, characteristic X-ray emission, wave dispersion, energy dispersion

Определение Hf в циркониевых сплавах с использованием широкополосного фильтра рентгеновского излучения

А.П. Омельник, В.В. Левенец*, А.Ю. Лонин, И.В. Шевченко, А.А. Щур

Национальный научный центр “Харьковский физико-технический институт” НАН Украины, ул. Академическая, 1, г. Харьков, Украина, 61108; *e-mail: levenets@kipt.kharkov.ua

Поступила: 07 апреля 2018 г; Принята: 21 августа 2018 г

DOI: 10.17721/moca.2018.xx-xx

Исследованы возможности неразрушающего метода определения содержания гафния в циркониевых сплавах. Метод основан на возбуждении характеристического рентгеновского излучения атомов исследуемого объекта, в том числе L-серии атомов Hf, выпущенным в атмосферу пучком ускоренных до 2 МэВ протонов. Возбуждаемое излучение модифицируется широкополосным фильтром рентгеновского излучения, изготовленным из пластин пиролитического графита и регистрируется Si-PIN детектором. Изучены и определены оптимальные условия измерений. Показано, что при выбранных условиях эксперимента и времени измерения 10 минут предел обнаружения Hf в циркониевой матрице равен 20 ppm. Предложены способы улучшения метрологических характеристик методики при наличии интерферирующих элементов. Проведено исследование содержания и равномерности распределения гафния в оболочке тепловыделяющего элемента из сплава циркония Zr1%Nb.

Ключевые слова: гафний, цирконий, характеристическое рентгеновское излучение, волновая дисперсия, энергетическая дисперсия

В качестве конструкционных материалов активных зон водоохлаждаемых ядерных реакторов, которые эксплуатируются в жёстких условиях воздействия облучения, высоких температур, тепловых и механических нагрузок в настоящее время широко используются циркониевые сплавы. Создание экономичных и безопасных ядерных энергетических установок, а также их модернизация и продление срока эксплуатации действующих атомных электростанций во многом зависят от достижения требуемых

эксплуатационных характеристик циркониевых сплавов, используемых в конструктивных элементах активной зоны [1-5]. Одна из главных проблем при использовании циркония в ядерной энергетике – очистка от примеси гафния, который является его естественным геологическим спутником. Так как гафний, в отличие от циркония, является сильным поглотителем тепловых нейтронов (105 барн – усреднённое значение по изотопам для природного Hf и 180×10^{-3} барн - для природного Zr), то для применения в

реакторах требуется получение так называемого ядерночистого циркония, в котором содержание гафния находится на уровне 0.01 мас.% и ниже. Технологии получения ядерночистого циркония [6-9] и изделий из него [10,11] постоянно совершенствуются, требуя при этом качественного аналитического сопровождения [12]. Такое аналитическое сопровождение должно, в первую очередь, обеспечивать определение содержания гафния в циркониевом сырье (в исходном, и на различных этапах получения циркониевого концентрата), в слитках и заготовках, а также в конечных изделиях (в оболочках ТВЭЛ), причём, для готовых изделий определение содержания гафния должно быть неразрушающим.

Вследствие того, что у гафния и циркония одинаковы конфигурации валентных электронных оболочек и близки значения ионных радиусов, их химические свойства подобны. Для гафния пока еще не предложено ни одной специфической химической реакции. Поэтому для его определения в присутствии циркония приходится применять физико-химические, и, особенно в последнее время, физические (ядерно-физические) методы [13, 14]. Определять гафний в присутствии циркония позволяют спектрофотометрические методы [15], с регистрацией флюоресценции [16, 17] или эмиссионных оптических спектров [18, 19], в том числе, и с применением индуктивно-связанной плазмы [20]. Методика с атомной эмиссионной спектроскопией применялась в работах [21, 22]. Масс-спектрометрия с индуктивно-связанной плазмой и с искровым источником была использована в исследованиях, описанных в [22, 23]. Однако вышеперечисленные методы не являются неразрушающими, кроме того, они требуют выполнения во многих случаях сложной и трудоёмкой процедуры предварительной подготовки образцов перед измерением.

Благодаря увеличивающемуся количеству мощных источников нейтронов (ядерные реакторы, ускорители и др.) и высокому сечению поглощения их гафнием, довольно широкое распространение получил нейтронно-активационный анализ содержания гафния в цирконии и его сплавах [24-26]. Однако он далеко не всегда позволяет проводить неразрушающий анализ, так как серьёзные затруднения возникают при активации крупногабаритных объектов.

Более широкими возможностями в этом аспекте обладают методы элементного анализа, основанные на регистрации характеристического рентгеновского излучения (х.р.и.) атомов элементов исследуемого объекта. При этом методы могут отличаться как способом возбуждения х.р.и. (излучением от радиоактивного источника, излучением из рентгеновской трубки, пучком ускоренных заряженных частиц и др.), так и способом его регистрации

(волновая или энергетическая дисперсия). При энергодисперсионном способе анализа чаще всего используются полупроводниковые блоки детектирования рентгеновского излучения. Одной из особенностей таких блоков является ограничение на интенсивность регистрируемых рентгеновских квантов: большинство полупроводниковых блоков детектирования способны корректно работать при интенсивности регистрации не более нескольких тысяч квантов в секунду. С учётом этого обстоятельства при анализе малого количества гафния в циркониевой матрице для получения достаточной статистической величины счётов в аналитическом пике Hf потребуется значительное время набора спектра. Для его сокращения и улучшения метрологических характеристик измерений необходимы дополнительные усовершенствования методики, как, например, в работах [27-29]. При решении задачи определения содержания Hf в циркониевых матрицах широкое распространение получили методы, основанные на регистрации х.р.и. аналита, возбуждаемого излучением рентгеновской трубки [30, 31]. Однако, необходимость работы при высоком анодном напряжении 75-80 кВ (при возбуждении K-серии Hf) или наложения линий (в случае L-серии) создают технические сложности и затрудняют интерпретацию результатов.

Целью настоящей работы было создание неразрушающей инструментальной методики определения гафния в крупногабаритных изделиях сложной формы из циркония и его сплавов с требуемыми погрешностью и пределом обнаружения.

Экспериментальное оборудование и материалы

Исследования проводились на аналитическом ядерно-физическом комплексе "СОКОЛ" ННЦ ХФТИ (описан в [32, 33]). Использовался канал, реализующий вывод ускоренных протонов в атмосферу. Вид измерительной зоны канала. представлен на рис.1.

Рентгеновский фильтр представляет собой цилиндрическую сборку из плоскопараллельных пластин пиролитического графита размером 3 мм x 1 мм x 36 мм, вырезанных по отражающей плоскости (002) с мозаичностью порядка 0.5° и постоянной решетки 6.619Å. Интегральный фактор отражения такого кристалла равняется $(25-50) \times 10^{-4}$ рад и почти на порядок больше, чем у других кристаллов, используемых для отражения рентгеновского излучения в этом энергетическом диапазоне [34].

Устройство сборки позволяет центрировать ось пирографитного фильтра и детектора, а также производить независимое их перемещение с помощью микрометрических винтов. Это позволяет изменять средний входной угол падения рентгеновского излучения на кристаллы и

выходной угол и, таким образом, оптимизировать энергетический диапазон и ширину полосы пропускания фильтра.

Для отработки методики были изготовлены калибровочные образцы: с содержанием 1.45 мас.%, 0.3 мас.%, 0.097 мас.% гафния в цирконии; чистых элементов Hf, Cu, Zn; образец

следующего содержания: Hf – 0.57 мас.%, Cu – 0.49 мас.%, Pb – 0.51 мас.%, O – 0.18 мас.%, C – 10.0 мас.%, Zr – остальное; сплав Zr1%Nb с содержанием Hf 0.1% мас.

Исследуемый объект - часть твэльной трубки из сплава Zr1%Nb длиной 750 мм, диаметром 9 мм.

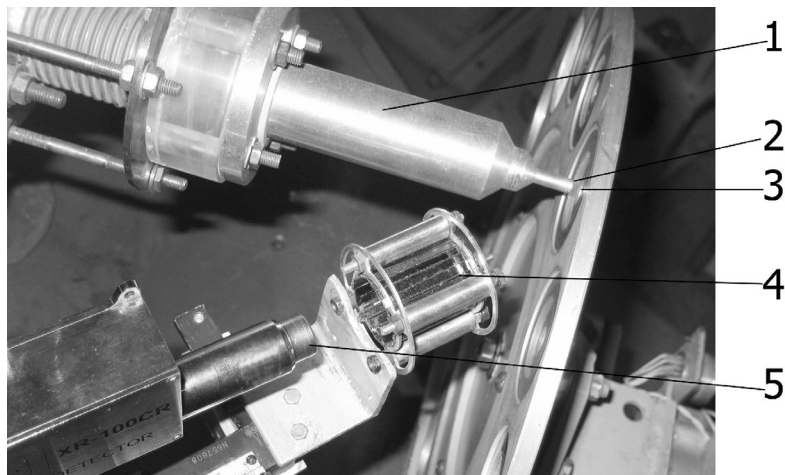


Рис.1. Вид измерительной зоны канала вывода пучка ионов в атмосферу: 1 - ионопровод; 2 - фольга окна вывода пучка в атмосферу; 3 - облучаемая мишень; 4 - рентгеновский фильтр; 5 - Si-PIN детектор.

Измерения, результаты и обсуждение.

Для определения функции пропускания рентгеновского излучения фильтром были выполнены расчеты, а также проведено ее экспериментальное определение и изучено влияние геометрических факторов на вид функции. Варьируемыми параметрами были: диаметр пучка протонов на мишени, длина

пластин фильтра, диаметр фильтра, расстояние между мишенью и фильтром и между фильтром и детектором, диаметр диафрагмы детектора. Один из возможных вариантов влияния параметров на вид функции показан на рис.2. Видно, что возможно получение квазипрямоугольной функции пропускания, с достаточно сильным подавлением излучения вне зоны пропускания излучения.

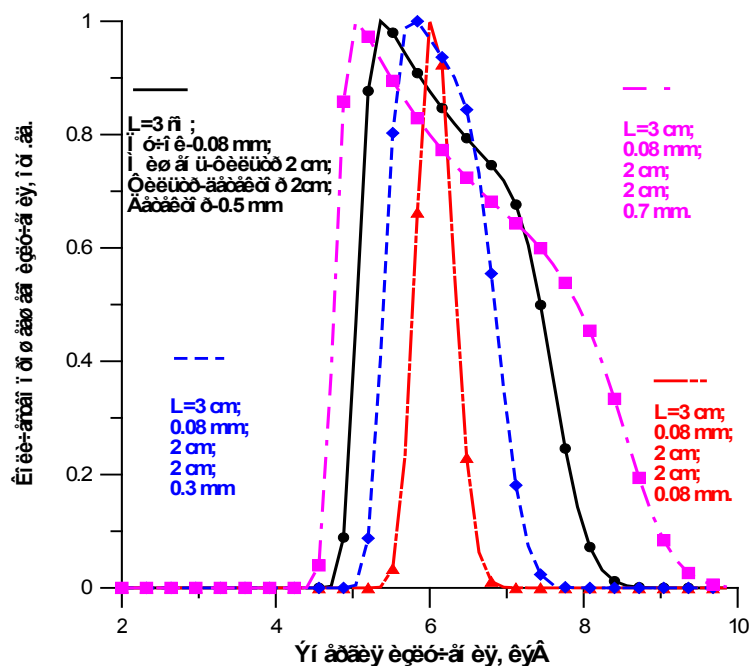


Рис.2. Изменение функции пропускания рентгеновского излучения фильтром в зависимости от геометрических параметров.

Спектр х.р.и. L-серии Hf, при возбуждении протонами с энергией 1.4 МэВ, которая является наиболее предпочтительной для этой задачи, измеренный без использования фильтра, показан на рис.3.

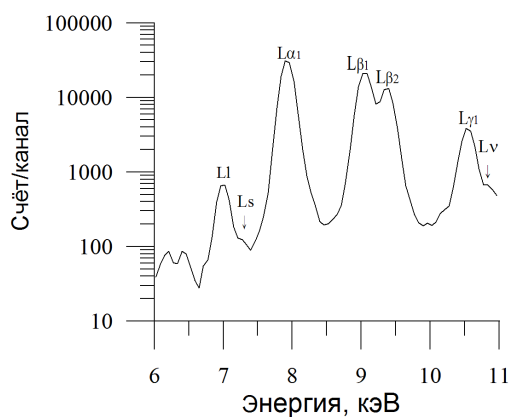


Рис.3. Спектр х.р.и. L-серии гафния.

В последующем были проведены исследования по выбору наиболее оптимальных условий для выделения каждой из линий мультиплета. На

рис. 4а-4г представлены участки спектров х.р.и. от калибровочного образца, содержащего 1.45 мас.% гафния в циркониевой матрице полученные без применения пироуглеродного фильтра и с ним при настройках на линии: Hf_{Lα1} (θ=13.52°), Hf_{Lβ1} (θ=11.78°), Hf_{Lγ1} (θ=10.12°), где θ - угол скольжения. Из спектра рис. 4а видно, что интенсивность Lα1-линии гафния почти в 6 раз меньше интенсивности Kα-линии циркония при содержании 1,45 мас.% гафния в циркониевой матрице. При содержании Hf в материалах на уровне 0.01 мас.% и ниже это соотношение будет примерно в 150 раз больше, т.е. около 450. Как видно из рис. 4б, применение пироуглеродного фильтра при угле скольжения θ=13.52° (настройка на отражение Hf_{Lα1} в первом порядке и отражение Zr_{Kα1} во втором порядке) приводит к подавлению интенсивности Zr_{Kα1} по отношению Hf_{Lα1} примерно в 5 раз.

При этом линия Zr_{Kβ1} подавляется практически полностью. Таким образом, при угле скольжения θ=13.52° происходит подавление излучения от матричного элемента Zr примерно в 6-7 раз более сильное, чем от определяемого элемента Hf.

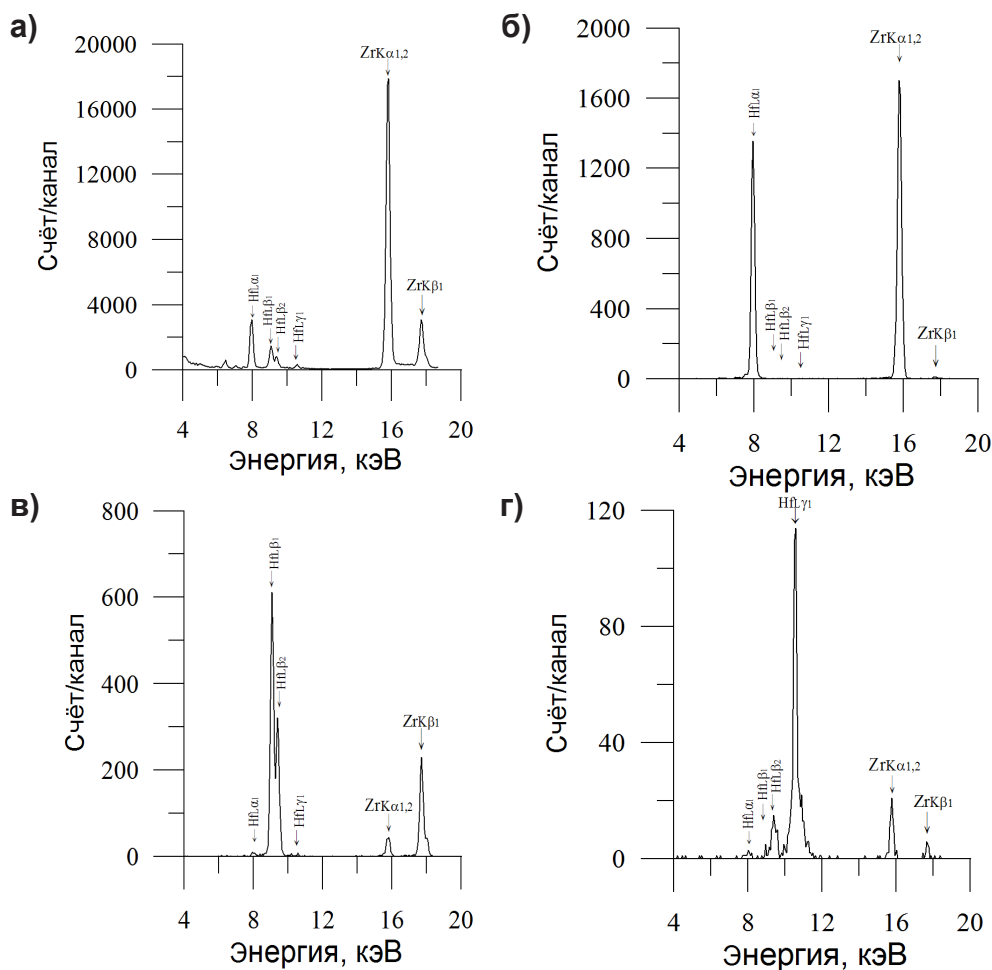


Рис. 4. Участки спектров х.р.и. от калибровочного образца, содержащего 1.45 мас.% гафния в циркониевой матрице: а) без применения пироуглеродного фильтра; б) с фильтром, θ=13.52°; в) с фильтром, θ=11.78°; г) с фильтром, θ=10.12°.

Аналогичные измерения (рис.4в) и расчёты для $\theta=11.78^\circ$ (настройка на отражение $Hf_{L\beta 1}$ в первом порядке и отражение $Zr_{K\beta 1}$ во втором порядке) дают примерно такие же соотношения. Следует отметить, что, благодаря достаточно широкой полосе пропускания фильтра, возможно использование в качестве аналитических суммы линий $Hf_{L\beta 1}$ и $Hf_{L\beta 2}$, что даёт дополнительный выигрыш в увеличение интенсивности и, соответственно, в уменьшение погрешности определения и предела обнаружения.

Измерения при угле скольжения $\theta=10.12^\circ$ (настройка на отражение $Hf_{LY 1}$) дают подавления излучения от Zr в десятки раз по отношению к линии $Hf_{LY 1}$ (рис.4г); в блок детектирования попадает лишь перерассеянное х.р.и. циркония незначительной интенсивности.

С использованием изготовленных калибровочных образцов для энергии протонов 1.4 МэВ и величине тока протонного пучка 400...500 нА проведены измерения спектров х.р.и. и определены пределы обнаружения гафния в циркониевой матрице при выборе, в качестве аналитических, различных линий L-серии гафния (представлены в табл.1).

Таблица 1. Пределы обнаружения гафния в циркониевой матрице.

| Аналитическая линия гафния | $L_{\alpha 1}$ | $L_{\beta 1} + L_{\beta 2}$ | LY_1 |
|----------------------------|----------------|-----------------------------|--------|
| Угол скольжения, град | 13.52° | 11.78° | 10.12° |
| Заряд, мкКл | 250 | 250 | 900 |
| Предел обнаружения, мас. % | 0.004 | 0.002 | 0.01 |

Применение широкополосного фильтра позволяет понизить интенсивность излучения матричного элемента циркония относительно определяемого элемента гафния. Однако при этом его селективные свойства не всегда достаточны для выделения аналитических линий гафния $Hf_{L\alpha 1}$, $Hf_{L\beta 1}$ (или $Hf_{L\beta 1} + Hf_{L\beta 2}$), $Hf_{LY 1}$ от линий х.р.и. некоторых возможных примесных элементов. Таковыми могут быть линии K-серии Cu и Zn, или линии L-серии Pb. Было установлено, что при проведении определения гафния в образцах, у которых заранее неизвестно наличие или отсутствие вышеуказанных примесей одним из способов решения такой проблемы может быть проведение сравнительных измерений с тремя различными углами и, соответственно, с тремя различными аналитическими линиями. Вторым способом является выбор угла отражения на границе (срезе) полосы пропускания используемого фильтра. Измерения интенсивности линий $Cu_{K\alpha 1}=8.048$ кэВ и $Hf_{L\alpha 1}=7.899$ кэВ калибровочных образцов чистых элементов Hf и Cu при настройке на правый край полосы пропускания фильтра

($\theta=13.83^\circ$) показало уменьшение интенсивности $Cu_{K\alpha 1}$ по отношению к $Hf_{L\alpha 1}$ в 4 раза по сравнению с отношением интенсивности этих величин при настройке на отражение $Hf_{L\alpha 1}$ для $\theta=13.52^\circ$. Измерения при таких же углах скольжения, выполненные с калибровочным образцом, содержащим 0.57 мас.% гафния и 0.49 мас.% меди в циркониевой матрице, показали примерно такое же уменьшение интенсивности мешающей линии Cu по отношению к аналитической линии $L\alpha 1$ гафния. Следует отметить, что такой способ не позволяет полностью устранить влияние мешающей добавки на результат определения Hf, а для хорошей воспроизводимости при реализации предложенного способа требуется чрезвычайно высокая точность настройки рентгенооптической системы.

Разработанная методика была применена для определения содержания гафния в различных образцах материалов и изделий ядерной энергетики. В частности, изучено содержание и равномерность распределения Hf в твэльной трубке из сплава Zr1%Nb, изготовленной в Украине. Исследовались части около концов трубы и ее середина. Было установлено, что среднее содержание гафния не превышает нормативный показатель 0.05 мас.%, а его содержание вдоль длины трубы находится в пределах от 0.029 мас.% до 0.038 мас.%.

Выводы

Показана возможность неразрушающего определения гафния с низкой концентрацией в изделиях из циркониевых сплавов с использованием широкополосного фильтра рентгеновского излучения для модификации спектра х.р.и. перед его регистрацией полупроводниковым энергодисперсионным спектрометром. Было определено, что при возбуждении х.р.и. L-серии атомов Hf пучком протонов с энергией 1400 кэВ в зависимости от угла отражения для линий $L_{\alpha 1}$, $L_{\beta 1} + L_{\beta 2}$, $LY 1$ достигнут предел обнаружения гафния в циркониевой матрице 0.004 мас.%, 0.002 мас.%, 0.01 мас.% соответственно. Изучены и предложены способы улучшения метрологических характеристик измерений при наличии интерферирующих элементов Cu, Zn, Pb. Разработанная ядерно-физическая методика для неразрушающего определения Hf с низкой концентрацией в изделиях из циркониевых сплавов может быть применена при аналитическом сопровождении работ, связанных с разработкой, производством и сертификацией материалов для обеспечения нужд атомной энергетики.

Литература

1. Brown N.R., Todosow M., Cheng L-Y., Cuadra A. Screening of Reactor Performance and Safety of Fuel and Cladding Candidates with Enhanced Accident Tolerance. TopFuel 2015 Conference Proceedings - oral presentations Part 1. Zurich, Switzerland 13-17 September 2015, 10-20.
2. Воеводин В.Н., Неклюдов И.М. Проблемы радиационной стойкости конструкционных материалов ядерной энергетики. *Вісник Харківського університету. Серія фізична «Ядра, частинки, поля»*. 2006, 746, 3-22.
3. Займовский А.С., Никулина А.В., Решетников Н.Г. Циркониевые сплавы в ядерной энергетике. М.: Энергоатомиздат, 1994. 252 с.
4. Пилипенко Н.Н. Конструкционные материалы для элементов оборудования ядерно-энергетических установок. *Вісник Харківського університету. Серія фізична «Ядра, частинки, поля»*. 2009, 859, 44-50.
5. Ажажа В.М., Вьюгов П.Н., Лавриненко С.Д. Линдт К.А., Мухачев А.П., Пилипенко Н.Н. Цирконий и его сплавы: технологии производства, области применения. Обзор. Харьков: ННЦ ХФТИ, 1998. 89 с.
6. Готвянский Ю.Я. Рокожиця Н.М. Принципи отримання ядерно-чистого цирконію. Спеціальна металургія: вчора, сьогодні, завтра. Київ: НТУУ «КПІ». 2010, 64-70.
7. Пилипенко Н.Н. Исследования и разработки по получению ядерно-чистого циркония и сплава на его основе. *Вопросы атомной науки и техники. Серия «Вакуум, чистые материалы, сверхпроводники»*. 2009, 6(18), 12-18.
8. Безумов В.Н., Дунаев А.И., Титов Г.Н. Исследование и разработка электролитической технологии получения циркония с низким (<0,01%) содержанием гафния. *Вопросы атомной науки и техники. Серия «Физика радиационных повреждений и радиационное материаловедение»*. 1999, 2(77), 14-19.
9. Туманов Ю.Н. Плазменные и высококачественные процессы получения и обработки материалов в ядерном топливном цикле: настоящее и будущее. М.: Физматлит, 2003. 760 с.
10. Ажажа В.М., Борц Б.В., Бутенко І.М. та ін. Виробництво партії трубних заготовок трекс-труб та виготовлення дослідно-промислової партії твельних труб зі сплавом Zr1Nb із вітчизняної сировини. *Наука та інновації*. 2006, 6, 18-30.
11. Вахрушева В.С. Проблемы создания производства циркониевого проката в Украине. *Вопросы атомной науки и техники. Серия «Физика радиационных повреждений и радиационное материаловедение»*. 2014, 2(103), 62-68.
12. А.В. Зац, В.В. Левенец, А.П. Омельник, В.М. Пистряк, А.А. Щур. Ядерно-физические методы в исследовании материалов и изделий циркониевого производства. *XX международная конференция по физике радиационных явлений и радиационному материаловедению, 10-15 сентября 2012 г.: труды конференции. Алушта, Крым, Украина. 2012, 142-143.*
13. Anil K. Mukherji. Analytical Chemistry of Zirconium and Hafnium. *International Series of Monographs on Analytical Chemistry*. 1970, 40, 283 p.
14. Азаренков Н.А., Кириченко В.Г., Левенец В.В., Неклюдов И.М. Ядерно-физические методы в материаловедении: учебное пособие Харьков: ХНУ имени В. Н. Каразина, 2013. 300 с.
15. Елинсон С.В., Петров К.И. Аналитическая химия циркония и гафния. М.: Наука, 1965. 241 с.
16. Brookes A. Studies on the analytical chemistry of hafnium and zirconium. Part II. Fluorimetric determination of hafnium in the presence of zirconium by using quercetin. *Analyst*. 1970, 95, 781-785.
17. Зельцер Л.Е., Талипов Ш.Т., Морозова Л.А. Люминесцентное определение циркония и гафния при совместном присутствии. *Журнал аналитической химии*. 1980, 9(35), 1747-1750.
18. ГОСТ 13997-68. Циркония двуокись (техническая), циркононый концентрат и огнеупоры на их основе. Методы анализа. Огнеупоры и огнеупорные изделия. / М.: Изд-во стандартов, 1975, 605-660.
19. Stempel. G. D. Emission Spectrographic Determination of Hafnium in Zirconium Dioxide. *Applied Spectroscopy*. 1973, 27(2), 129-132.
20. Baluch N. Z., Anwar K., Ifzal S. M., Mohammad D. Determination of hafnium in zirconium oxide using inductively coupled plasma emission spectrometry. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*. 1990, 141(2), 417-428.
21. Nabi Mehdi, Pouyan Shahbazi. A simple method for determining Hf in Zr and Zr alloys by ICP-AES. *Nuclear Science and Techniques*. 2009, 20, 340-343.
22. Smolik M., Jakóbič-Kolon A. Determination of microamounts of hafnium in zirconium using inductively coupled plasma atomic emission spectrometry and inductively coupled plasma mass spectrometry during their separation by ion exchange on Diphonix chelating resin. *Analytical Chemistry*. 2009, 81(7), 2685-2687.
23. Lura J. Powell, Paul J. Paulsen. Determination of hafnium in zirconium metal and Zircaloy 4 metal standard reference materials by isotope dilution spark source mass spectrometry. *Analytical Chemistry*. 1984, 56(3), 376-378.
24. Pitrus R.K. Determination of hafnium in zircaloy clad by means of INAA. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Letters*. 1988, 127(4), 283-288.
25. Acharya R., Nair A.G.C., Reddy A.V.R., Goswami A. Standard-less analysis of Zircaloy clad samples by an instrumental neutron activation method. *Journal of Nuclear Materials*. 2004, 326, 80-85.
26. Smolik Marek, Polkowska-Motrenko Halina, Hubicki Zbigniew et al. Determination of hafnium at the 10⁻⁴% level (relative to zirconium content) using

neutron activation analysis, inductively coupled plasma mass spectrometry and inductively coupled plasma atomic emission spectrometry. *Analytica Chimica Acta*. 2014, 806, 97–100.

27. Agrawal R. M., Jha S.N., Kaimal Rugmini et al. Determination of small concentrations of hafnia in zirconia by selective excitation energy dispersive X-ray emission spectrometry. *Fresenius' Journal of Analytical Chemistry*. 1994, 349(6), 434–437.

28. В.В. Левенец, А.П. Омельник, Н.П. Усиков, Е.А. Чернов, А.А. Щур Система режекции спектрометрических импульсов с электростатическим отклонением пучка протонов. *Збірник наукових праць СНУЯЕтаП*. 2008, 4(28), 143-149.

29. В.В. Левенец, А.П. Омельник, А.А. Щур, Е.А.Чернов. Использование рентгеновского фильтра из пиролитического графита при определении железа в тетрафториде циркония. *Вісник Харківського університету, сер. "Ядра, частинки, поля"*. 2007, вип.2(34), №777, 84-88.

30. Hasany S.M., Rashid F., Rashid A., Rehman H. Determination of traces of hafnium in zirconium oxide by wavelength dispersive X-ray fluorescence

spectrometry. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Articles*. 1990, 142(2), 505-514.

31. Afzal M., Hanif Javed, Hanif Imtiaz. Determination of zirconium and hafnium in solution by X-ray fluorescence spectrometry. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Articles*. 1990, 139(2), 203-214.

32. V. V. Levenets, A. Y. Lonin, O. P. Omel'nik A. O. Shchur. PIXE in the studies of stable cesium sorption from water solutions. *X-Ray Spectrometry*. 2015, 44 (6), 447–450. DOI 10.1002/xrs.2626.

33. V. V. Levenets, A.Yu. Lonin, O.P. Omel'nik, A.O. Shchur. Comparison the sorption properties of clinoptilolite and synthetic zeolite during sorption strontium from the water solutions in static conditions: Sorption and quantitative determination of strontium by the method PIXE. *Journal of Environmental Chemical Engineering*. 2016, vol. 4, iss. 4PA, 3961-3966.

34. Андерсон А.А., Владимирский Ю.Б., Еврафов А.А., Коган М.Т., Люкшин Е.Н. Рентгеновский монохроматор из пиролитического графита. *Аппаратура и методы рентгеновского анализа*. 1972, вып. XI, 32-38.