

PANDA

Пассивный неразрушающий анализ ядерных материалов. Справочник

Под редакцией Дугласа Райлли, Норберта Энслина,
Хэйстингса Смита и Крайнера С.

Отчет Комиссии США по ядерному регулированию
NUREG/CR-5550

Перевод с английского, ВНИИА, 2007

Passive Nondestructive Assay of Nuclear Materials

Edited by D.Reilly, N.Ensslin, H.Smith, Jr. and S.Kreiner

1991, NUREG/CR-5550

Prepared for:

Division of Facility Operations Office of Nuclear Regulatory
Research

U.S. Nuclear Regulatory Commission, Washington, DC 20555

Книга является справочным пособием по теоретическим основам и практическому применению методов пассивного неразрушающего анализа для учета и контроля ядерных материалов. Термин неразрушающий анализ (НРА) используется для ряда методов измерения ядерных топливных материалов. Эти методы измеряют вынужденное или спонтанное излучение, испускаемое ядерным материалом. Такие измерения являются неразрушающими в том смысле, что они не изменяют ни физическое, ни химическое состояние ядерного материала. В некоторых случаях испускаемое излучение является уникальным для исследуемых изотопов, а его интенсивность часто может быть связана с массой изотопов.

Оригинальное издание книги, известное специалистам как PANDA, является частью четырехтомника по измерениям параметров и контролю ядерных материалов, подготовленного национальными лабораториями Министерства энергетики США по заказу Комиссии по ядерному регулированию США.

Перевод книги на русский язык предназначен для работников атомной промышленности, а также студентов и аспирантов инженерно-физических специальностей высших учебных заведений. Перевод книги выполнен Всероссийским научно-исследовательским институтом автоматики (ВНИИА) на основании контракта с Ливерморской национальной лабораторией им. Лоуренса (ЛЛНЛ, США) № B505988.

Вступительное слово руководителей проекта

Представляемая российскому читателю книга является результатом сотрудничества между Всероссийским научно-исследовательским институтом автоматики (ВНИИА, РФ), Ливерморской национальной лабораторией им. Лоуренса (ЛЛНЛ, США) и Лос-Аламосской национальной лабораторией (ЛАНЛ, США) по изданию русскоязычной версии книги “Passive Nondestructive Assay of Nuclear Materials” (известной как PANDA), осуществляемого при поддержке Отдела международного сотрудничества в области защиты, контроля и учета ядерных материалов Министерства энергетики США.

Приказом Министерства РФ по атомной энергии ВНИИА была поручена поддержка аппаратного обеспечения СЗУиК ЯМ на предприятиях Минатома. С 1995 г. ВНИИА сотрудничает с ЛЛНЛ и ЛАНЛ в области гамма-спектрометрических измерений высокого разрешения, активных и пассивных измерений нейтронных совпадений плутония и урана для СЗУиК. В процессе этого сотрудничества мы осознали, что для внедрения и устойчивости работы всех систем СЗУиК очень важно использовать российское приборное обеспечение. В 1998 г. по программе СЗУиК был инициирован ряд проектов по долгосрочной эксплуатации оборудования и методов измерений СЗУиК на предприятиях Минатома. Одной из задач этих проектов является помощь в развитии инфраструктуры для обеспечения и поддержки оборудования СУиК в России. Эта помощь включает предоставление документации и информации о современных методиках и оборудовании СУиК на русском языке. В рамках этой программы и был инициирован перевод книги.

Англоязычное издание было подготовлено в 1991 г. коллективом признанных американских специалистов под руководством Научно-технической группы ЛАНЛ по гарантиям на основании контракта с Комиссией США по ядерному регулированию (КЯР) и выпущено в серии отчетов Комиссии под номером NUREG/CR-5550. Редакторами издания были Хэйстингс Смит, Норберт Энслин и Дуглас Райлли. Монография логичным образом завершила комплекс работ, проводимых учеными США и Европы в области контроля ядерных материалов с сохранением их целостности и структуры. Центральной идеей такого контроля является отсутствие вмешательства в измеряемый образец и, насколько это возможно, в технологический процесс. Монография описывает международный, национальный и, одновременно, неинтрузивный подход к обеспечению контроля, учета и, следовательно, нераспространения ядерных материалов. Она призна-

на классической энциклопедией по измерениям характеристик ядерных материалов и используется в качестве соответствующего справочного пособия для англоязычных специалистов на предприятиях ядерного топливного цикла. Мы надеемся, что эта книга станет справочником также и для специалистов российских институтов, предприятий, а также для разработчиков и поставщиков приборного обеспечения СЗУиК ЯМ.

Российские специалисты ознакомились с книгой в 1993 г. Выяснилось, что аналогичной русскоязычной энциклопедии нет. Поэтому в 1994-1995 гг. группа специалистов ВНИИА выполнила рабочий перевод книги, который использовался в первую очередь для обучения. Рукопись была передана в УМЦУК (ФЭИ) и ВНИИЭФ. Она обладала рядом существенных недостатков: местами неадекватный перевод, плохой стиль изложения, отсутствие единой терминологии, отсутствие единого редактирования. В то же время стало очевидно, что необходимо возможно более широкое распространение русскоязычного варианта книги среди специалистов стран СНГ. Руководители программы СЗУиК ЯМ ВНИИА неоднократно обсуждали с менеджерами ЛАНЛ и ЛЛНЛ проект перевода книги PANDA. И наконец, в 1999 г. благодаря усилиям Вэйна Рютера (ЛЛНЛ) была получена поддержка Министерства энергетики США в рамках программы СЗУиК ЯМ, а ЛАНЛ получил у КЯР разрешение на подготовку российской версии книги во ВНИИА, и в сентябре 1999 г. начались совместные работы ВНИИА, ЛЛНЛ и ЛАНЛ по проекту.

Эта книга является результатом восьмимесячных усилий ВНИИА по кропотливой подготовке российской версии PANDA для специалистов ядерных предприятий России и стран СНГ. Много времени было затрачено на новый перевод книги. Проведено многократное редактирование и исправление текста. Здесь необходимо отметить усилия независимых экспертов из ФЭИ Валерия Буланенко, Владимира Фролова и Андрея Можаяева. Они были не только рецензентами, но и весьма требовательными и конструктивными научными редакторами.

Большую роль сыграла Галина Балацкая (ЛАНЛ), которая помогала установить взаимоднозначное соответствие между русскими и американскими терминами и аббревиатурами.

Кроме того, Хэйстингс Смит сделал казалось бы невозможное — взаимодействовал с более чем 10-ю авторами монографии и обеспечил издательство подлинниками фотографий, схем и графиков. Это позволило обеспечить практически одинаковое качество российского и американского изданий книги.

При подготовке российского издания книги ставилось несколько основных целей:

- обеспечить качественный перевод на русский язык;
- обеспечить преемственность и однозначное соответствие русских и американских терминов;
- поддержать внедрение и эксплуатацию систем СЗУ и КЯМ, установленных в рамках сотрудничества РФ и США.

Надеемся, что наш труд будет способствовать распространению книги "Пассивный неразрушающий анализ ядерных материалов" и она еще много лет будет настольной у специалистов по СЗУиК ЯМ в России и странах СНГ.

Вступительное слово руководителей проекта

В заключении, мы хотели бы особо поблагодарить Наталью Мошкину и Игоря Сазонова (ВНИИА), которые вложили много сил, времени, знаний и энтузиазма в подготовку издания.

Заранее благодарим читателей за все критические и конструктивные замечания по русскому переводу книги.

*Вэйн Рутер
Хэйстингс Смит, мл.
Андрей Свиридов*

От рецензента русского издания

Предлагаемая читателю в русском переводе книга написана коллективом американских авторов, в основном из Лос-Аламосской лаборатории, и содержит подробное описание неразрушающих ядерно-физических методов пассивного анализа концентраций и масс ядерных материалов на основе обогащенного урана и плутония, а также методов контроля сохранности ядерных материалов внутри периметра ядерного объекта, где они перерабатываются, используются или хранятся. Книга имеет прямое отношение к решению проблемы нераспространения ядерного оружия и ядерных материалов. Данная проблема продолжает быть актуальной во всем мире, включая и Россию, обладающую крупномасштабной атомной промышленностью. В настоящее время количество ядерных материалов в так называемой "балк"-форме возрастает в связи с конверсией оружейных ядерных материалов при снятии с эксплуатации ядерных установок и, как следствие, образованием новых отходов, содержащих уран или плутоний. В этом плане материалы книги очень актуальны для российских специалистов в области ядерных технологий и обеспечения их безопасности.

Прежде всего отметим, что основное достоинство книги — ее *фундаментальность*, т.е. глубокое рассмотрение естественных процессов и явлений, исходных для понимания методов анализа и проектирования соответствующих средств измерений.

В книге использованы несколько сотен источников информации в виде статей, докладов, монографий, опубликованных преимущественно американскими авторами в 1970-80 годах. В этом плане книга отражает ситуацию в области неразрушающего анализа урана и плутония к началу 90-х годов, когда установки контроля стали применять в атомной промышленности многих стран мира, чему постоянно содействует МАГАТЭ.

Пассивные методы неразрушающего анализа урана и плутония *впервые* представлены в *одном* издании, в котором систематизированы результаты многолетних исследований, начиная с 50-х годов. *Полнота* их представления определила значительный объем книги (23 главы, 700 страниц текста). Несмотря на то, что она написана большим коллективом специалистов, ее содержание и построение характеризуются логикой и единством изложения, присущим монографиям. В известной мере книгу можно сравнить с широко распространенными в России учебниками для ВУЗов по основам экспериментальных методов ядерной физики с тем, однако, отличием, что в книге даются многочисленные примеры их применения в атомной промышленности.

Помимо научного интереса и своего значения как учебного руководства для студентов и преподавателей данная книга станет и справочным пособием для широкого круга лиц, непосредственно занятых решением вопросов контроля и учета

ядерных материалов. Следует далее отметить, что представленные в книге методы измерений в принципе аналогичны тем, которые используются в учете и контроле любых радиоактивных веществ. Это обстоятельство существенно расширяет круг ее читателей.

В книге представлены пассивные неразрушающие методы анализа урана и плутония по проникающим излучениям, к которым относятся гамма- и рентгеновское излучения (одна группа методов) и нейтронное излучение (вторая группа). В практике контроля и учета ЯМ используют не только пассивные, но и активные методы, называемые так в связи с применением радиоактивных источников для возбуждения аналитического излучения. Активные методы из-за своей сложности менее распространены в производстве ЯМ. Некоторые из них также представлены в данной книге.

Представляемая книга полностью посвящена методам неразрушающего анализа ядерных материалов, что делает ее энциклопедией по данному аналитическому направлению. Это и было основной целью авторского коллектива. Не умаляя ее достоинств отметим, что базовым аналитическим направлением в контроле и учете ядерных материалов являются методы разрушающего анализа, прежде всего как более точные и более чувствительные. Выполняя эту роль, разрушающие методы также используются для изготовления стандартных образцов ЯМ, необходимых для неразрушающих методов. Полезные знания о методах разрушающего анализа читатель может получить из российских публикаций.

В книге значительное место уделено техническим средствам реализации методов НРА. Эти средства всегда будут предметом технического прогресса: новые поколения приборов, новые программы и средства вычислительной техники и др. Вполне предсказуемо ожидать, что основные достижения в этой области будут связаны с получением и обработкой значительно большего, чем сейчас, объема информации о контролируемом ядерном материале.

В книге представлены некоторые электронные схемы (например, сдвиговый регистр, дискриминатор по форме импульсов), которые являются частью методических решений и останутся таковыми независимо от новых поколений приборов.

При переводе и редактировании столь фундаментальной и объемной книги специалистам ВНИИА удалось достигнуть приемлемого соответствия между оригиналом и переводом в описаниях физических процессов, сохранить американский стиль изложения (краткость грамматических форм, терминология и др.), а также учесть особенности изложения аналогичных материалов в российских изданиях.

Издание книги в России является особенно важным из-за огромного инвентарного количества ядерных материалов, учет и контроль которых должен отвечать современным требованиям по точности и надежности. Она адресована специалистам предприятий Минатома России, преподавателям и студентам ВУЗов и институтов повышения квалификации. Для всех лиц, интересующихся проблемой контроля урана и плутония в ядерных технологиях и обеспечения их ядерной и радиационной безопасности, данная книга станет руководством на многие годы.

Доктор технических наук
В. В. Фролов

Предисловие к русскому изданию

Как известно, в России в последнее время много внимания уделяется проблеме совершенствования системы учета и контроля ядерных материалов, которая состоит из нескольких основных задач: информационной поддержки; обеспечения нормативной документацией; создания, совершенствования и внедрения методик измерений и контроля; создания и обеспечения аппаратурой для измерений и контроля ядерных материалов; обучения персонала современным методам работы.

В связи с этим возникла потребность в справочных материалах, обобщающих мировой опыт в этой области. Представляемая русскоязычному читателю книга, входящая в так называемую "черную серию" книг Комиссии США по ядерному регулированию (серия получила такое неофициальное название из-за цвета обложки книг), является таким справочным пособием практически почти по всем из вышеперечисленных вопросов. В эту серию вошли: книга Ц. Гозани по активному неразрушающему анализу ядерных материалов [1], справочник по методам измерений для обеспечения ядерных гарантий под редакцией Д. Р. Роджерса [2], справочник по статистическим методам в управлении ядерными материалами под редакцией В. М. Боуэна и К. А. Боннета [3] и, наконец, представляемая монография по пассивному неразрушающему анализу ядерных материалов под редакцией Д. Райлли, Н. Энслина, Х Смита и С. Крайнер [4].

Рецензенты перевода этой книги и руководители проекта уже высказались о ее значении и полезности для специалистов России и стран СНГ, поэтому мы не будем повторять эти рассуждения. Следует только отметить, что за время, прошедшее с момента ее издания на английском языке, приведенная в книге информация не устарела, а описанные методы нашли еще большее практическое подтверждение. Конечно в книге отсутствует описание многих современных приборов. Но такую информацию читатель сможет почерпнуть в каталоге приборов для учета и контроля ядерных материалов [5], второе издание которого в 1999 году подготовлено специалистами ВНИИ автоматики (РФ) и Брукхейвенской национальной лаборатории (США). Следует также использовать ряд изданий, выпущенных в России, дополняющих и уточняющих вопросы, изложенные в монографии. К таким источникам можно отнести работы [6-11].

По-видимому, единственным параметром, по которому книгу можно считать устаревшей, это упоминающиеся вычислительные машины, применявшиеся 10-15 лет назад для обработки результатов измерений. За истекшие годы вычислительная техника настолько продвинулась вперед, что эти разделы представляют только исторический интерес для специалистов, использующих сейчас самые современные и весьма эффективные компьютеризированные устройства для управления процессом анализа ядерных материалов и статистической обработки результатов измерений. Приборное оснащение неразрушающего анализа интенсивно развивалось за эти годы. Методики измерений достаточно отработаны, од-

нако значительно увеличивается автоматизация и развивается миниатюризация приборного оснащения.

Современный читатель в дополнение к представляемой монографии может использовать труды ежегодных конференций Американского института по управлению ядерными материалами (INMM). Весьма также полезны труды ежегодных конференций Европейского общества ESARDA. Много информации можно почерпнуть в материалах Российских международных конференций по УиК ЯМ, в том числе доклады РФЯЦ-ВНИИЭФ, РФЯЦ-ВНИИТФ, ГНЦ РФ-ФЭИ, ГНЦ РФ-ВНИИНМ, ВНИИА и других организаций.

При подготовке перевода книги переводчикам и редакторам пришлось пойти на применение ряда российских терминов, в частности, по статистике, метрологии и т.д. (перевод части терминов, по которым отсутствует устоявшаяся терминология, был оставлен в редакции переводчиков). Это связано с отличием систем стандартов по измерениям в России и США. Существующая в России система нормативных документов (стандартов) по радиационной и ядерной безопасности отличается от принятой в США. Все это заставило нас при поддержке рецензентов и руководителей проекта отказаться от приложений А, В и С, посвященных этим проблемам. Все эти вопросы отражены в действующей нормативной документации, а также в ряде доступных справочников.

По нашему мнению представляемая книга будет весьма полезна специалистам в области защиты, учета и контроля ядерных материалов различных организаций в России и странах СНГ, среди которых:

- предприятия, институты и проектные организации Минатома;
- институты и войсковые части Минобороны;
- судостроительные предприятия и эксплуатирующие организации атомного флота;
- инспекционные службы Минатома, Минобороны и Госатомнадзора;
- институты Миннауки и Российской академии наук;
- технические университеты, готовящие специалистов в области методов контроля ядерных объектов;
- отраслевой учебно-методический центр по учету и контролю ЯМ, а также Центральный институт подготовки кадров Минатома;
- предприятия и институты стран СНГ и Балтии;
- коммерческие фирмы России и стран СНГ, разрабатывающие и производящие аппаратуру и программное обеспечение контроля ядерных материалов.

Выражаем надежду, что эта книга станет первой в серии изданий по учету и контролю ядерных материалов, включающей как переводы зарубежной литературы, так и работы российских авторов.

В заключение хочется отметить всех специалистов, без напряженного труда которых издание книги на русском языке было бы невозможно:

- переводчиков: Бабкину Н. В., Григорьева А. Н., Лим Л. Г., Орлову Г. В., Мошкину Н. В., Савосина Л. Г., Сазонова И.Н., Самарина П.И., Свиридову В. В.;
- научно-технических редакторов: Александрова В. Д., Буланенко В. И., Мошкину Н. В., Воробьева Ю. А., Можяева А. В., Сазонова И.Н., Свиридову В. В., Фролова В. В., Янюшкина В. А.;

- научных рецензентов и редакторов: Буланенко В. И., Можаяева А.В., Фролова В. В. (ФЭИ),
- а также поблагодарить Михайлову Л. С. за помощь в корректуре и Свиридова К. А. (издательство БИНОМ), выполнившего техническую подготовку и верстку книги.

Особенно хочется отметить поддержку американских специалистов: доктора В. Д. Рютера (Ливерморская национальная лаборатория им. Лоуренса), доктора Х. А. Смита, мл. и доктора Г. Балацкую (Лос-Аламосская национальная лаборатория).

Мы будем признательны всем читателям и пользователям этого перевода за присланные в наш адрес замечания и советы.

*Н. В. Мошкина,
И. Н. Сазонов*

ЛИТЕРАТУРА

1. Active Nondestructive Assay of Nuclear Materials: Principles and Applications / T.Gozani, 1981.
2. Handbook of Nuclear Safeguards Measurement Methods / Donald R.Rogers, 1983.
3. Statistical Methods for Nuclear Management / W.M.Bowen and Carl A.Bonnett, 1988.
4. Passive Nondestructive Assay of Nuclear Materials / Edited by D.Reilly, N.Ensslin, H.Smith, Jr. and S.Kreiner, 1991.
5. Каталог приборов для учета и контроля ядерных материалов / Ред. Л. Неймотин (БНЛ США), В. Свиридова (ВНИИА РФ), изд. 2, доп. — № BNL-65619-99/01-Rev. — 1999.
6. Абрамов А. И., Казанский Ю. А., Матусевич Е. С. Основы экспериментальных методов ядерной физики / Изд. 3, пер. и доп. — М.: Энергоатомиздат, 1985.
7. Волков Н. Г., Христофоров В.А., Ушакова Н.П. Методы ядерной спектрометрии. — М.: Энергоатомиздат, 1990.
8. Григорьев В. А., Колюбин А.А., Логинов В.А. Электронные методы ядерно-физического эксперимента. — М.: Энергоатомиздат, 1988.
9. Крамер-Агеев Е. А., Лавренчик В. Н., Самосадный В. Т., Протасов В. П. Экспериментальные методы нейтронных исследований. — М.: Энергоатомиздат, 1990.
10. Методы химического и радиохимического контроля в ядерной энергетике / Ред. Л. Н. Москвин. — М.: Энергоатомиздат, 1989.
11. Фролов В. В. Ядерно-физические методы контроля делящихся веществ. — М.: Энергоатомиздат, 1988. и др.

Предисловие к американскому изданию

Данная книга является справочным пособием по теоретическим основам и применению методов пассивного неразрушающего анализа (НРА). Эта книга является частью четырехтомника по измерениям и контролю ядерных материалов, выпуск которого финансировался Комиссией США по ядерному регулированию (КЯР США). Хотя в этой книге и рассмотрены несколько активных методов НРА, более подробно они описаны в другой книге этой серии, которая составлена Ц. Гозани.

Круг специалистов, на которых рассчитана данная книга, охватывает как новичков в области НРА, так и опытных практиков. Хотя предложение о написании этой книги исходило от КЯР, в Лос-Аламосе желание подготовить книгу подобного рода зрело долгое время. Многие методы анализа ядерных материалов и измерительные приборы, описанные в данной книге, были разработаны в Лос-Аламосе. Мы приветствуем возможность более полного описания всех основных методов анализа в одной книге, так как ее не могут заменить статьи, доклады и другие научные публикации по отдельным вопросам, охваченным в этой книге.

Мы надеемся, что эта книга окажется полезным и долговременным пособием по интересующей потребителей теме пассивного НРА.

Нам хотелось бы выразить глубокую признательность за поддержку Исследовательскому управлению Комиссии США по ядерному регулированию, финансировавшему написание и подготовку этой книги. Нам особенно хотелось бы поблагодарить д-ра Сандру Фраттали из Отделения гарантий за ее терпение и помощь в руководстве и опеке над этим проектом в течение многих лет. Мы хотели также выразить признательность за постоянную поддержку со стороны Управления гарантий и безопасности Министерства энергетики США, под контролем которого были разработаны методы анализа и измерительная аппаратура, описанные в этой книге.

Много людей было привлечено к созданию этой книги. Она действительно стала плодом коллективных усилий, в которых каждый участник играл жизненно важную роль. Большинство участников процесса создания книги представляли Группу анализа гарантий Лос-Аламосской национальной лаборатории, однако существенный вклад в эту работу был также внесен членами Группы передовых ядерных технологий Университета штата Аризона и колледжем города Форт Льюис. Авторы, внесшие свой вклад в создание книги, указаны в отдельных главах. Мы хотели бы выразить признательность за помощь со стороны Уильяма Б. Уилсона (Группа прикладной ядерной науки) в написании главы 11 и Стенлея Симмондса в написании главы 14. Уолт Стром из Маундской лаборатории и Рон

Перри из Аргоннской национальной лаборатории предоставили существенную информацию по главам 21 и 22, посвященным калориметрии.

Эта книга в большой степени испытала благотворное влияние со стороны маститых рецензентов, которые представили авторам свои замечания по корректировкам и предложения по улучшению книги. Нам хотелось поблагодарить следующих рецензентов: Джеймса Кадьюкса, Поля Клоснера и Рэймонда Дьюберри (Вестингхаус Саванна-Ривер Корпорейшн), Джона Флейсснера (завод Рокки Флэтс), Вилли Хигинботема (Брукхейвенская национальная лаборатория), Уильяма Леинга (Ок-Риджская национальная лаборатория) и Самуэля Унтермейера (частный консультант).

Дуглас Райлли, Норберт Энслин и Хэйстингс Смит работали руководителями проекта и главными научно-техническими редакторами, а также авторами нескольких глав. Сара Крайнер была техническим редактором на протяжении длительного периода времени создания этого тома. Большая доля труда, обеспечившего легкость прочтения книги, непосредственно связана с тщательным и кропотливым редактированием со стороны Сары. Любой том такого объема требует большого труда со стороны литературных редакторов. С нами умело работали София Ховард и Селина Ортиз, которые терпеливо мирились со многочисленными изменениями текста. Фотомонтаж и окончательное редактирование были выполнены Джойсом А. Мартинесом из группы поддержки технологии систем и Мартой Ли Деланой из редакционной группы Лос-Аламоса. Всем этим людям мы хотим выразить душевную благодарность.

*Дуглас Райлли,
Норберт Энслин
Хэйстингс Смит, мл.*

Введение

Термин *неразрушающий анализ* (НРА) используется для ряда методов измерения ядерных топливных материалов. Эти методы измеряют вынужденное или спонтанное излучение, испускаемое ядерным материалом. Такие измерения являются неразрушающими в том смысле, что они не изменяют ни физическое, ни химическое состояние ядерного материала. В некоторых случаях испускаемое излучение является уникальным для исследуемых изотопов, а его интенсивность часто может быть связана с массой изотопов. Другие методы измерений ядерных материалов связаны с отбором пробы материала и ее анализом с помощью процедур разрушающего химического анализа. НРА устраняет необходимость пробоотбора, снижает облучение оператора и выполняется намного быстрее, чем химический анализ. К сожалению, НРА обычно менее точен, чем химический анализ. Разработка методик НРА отражает тенденцию к автоматизации процесса и снижению трудозатрат, которая существует в нашем обществе. Измерения НРА применяются на всех предприятиях топливного цикла для учета материалов, управления технологическим процессом, контроля критичности и мониторинга периметра.

Первоначальным стимулом разработки методик НРА была потребность в принятии повышенных гарантий в отношении ЯМ. Когда организациям, обеспечивающим гарантии, потребовалось большее число измерений ядерных материалов, то стало ясно, что необходимы методы оперативных измерений, которые не изменяли бы состояние изделий из ЯМ. Усилия по их разработке, которые были направлены на удовлетворение этих потребностей, были поддержаны Комиссией США по ядерному регулированию, Министерством энергетики США и Международным агентством по атомной энергии (МАГАТЭ). Также методы быстрого неразрушающего анализа (НРА) необходимы инспекторам по гарантиям, которые должны контролировать инвентарные количества ядерных материалов на установках во всем мире.

Методики НРА разделяются на пассивные и активные в зависимости от того, измеряется ли излучение спонтанного распада ядерного материала или излучение, вызванное внешним источником. Эта книга в основном посвящена пассивным методикам НРА, хотя также рассматриваются некоторые активные методы, например, гамма-абсорбциометрия и рентгеновская флюоресценция, тесно связанные с методами пассивного анализа.

Основные методы НРА классифицируются как анализ гамма-излучения, нейтронный анализ и калориметрия. Методы анализа гамма-излучения рассмотрены в главах 1-10. В главах 1-6 рассматриваются основные вопросы, включая природу гамма-излучения, взаимодействие гамма-излучения с веществом, детекторы, измерительную аппаратуру и общие принципы проведения измерений. В

главах 7-10 рассматриваются задачи измерения обогащения урана, изотопного состава плутония, методы плотнометрии и рентгенофлуоресценции.

Методы нейтронного анализа обсуждаются в главах 11-17. В главах 11-13 рассматривается природа нейтронного излучения, взаимодействие нейтронов с веществом и детекторы нейтронов. В главах 14-17 рассматриваются теоретические вопросы и практическое применение методов регистрации полного потока нейтронов и нейтронных совпадений.

Глава 18 описывает анализ облученного ядерного топлива с использованием методов анализа гамма- и нейтронного излучения. В главе 19 рассматриваются высокочувствительные мониторы контроля периметра с детекторами гамма- и нейтронного излучений, которые отслеживают несанкционированное перемещение ядерного материала за границы объекта (установки). Глава 20 посвящена качественным и полуколичественным измерениям, целью которых является быстрая проверка содержимого контейнеров с ядерными материалами при подтверждении результатов физической инвентаризации. В этой главе также рассматриваются вопросы измерения отходов и отложений. В главах 21 и 22 описываются принципы калориметрического анализа и области его применения. Заключительная глава 23 является кратким руководством по применению методов неразрушающего анализа ядерных материалов и предназначена в помощь пользователю книги при подборе аппаратуры в соответствии с задачами контроля.

Содержание

Глава 1. Природа гамма-излучения	1
1.1 Гамма-излучение и спектр электромагнитного излучения	1
1.2 Характеристики ядерного распада	3
1.2.1 Процессы ядерного распада. Общие сведения.	3
1.2.2 Альфа-распад	4
1.2.3 Бета-распад	6
1.3 Образование рентгеновского излучения.	7
1.3.1 Модель атома Бора	7
1.3.2 Процессы образования рентгеновского излучения.	8
1.3.3 Спектры характеристического рентгеновского излучения.	9
1.4 Основные линии гамма-излучения ядерных материалов	10
1.4.1 Типичные спектры	10
1.4.2 Основные характеристики гамма-излучения, используемые для анализа ядерных материалов	10
1.4.3 Гамма-излучение продуктов деления	18
1.4.4 Радиационный фон.	20
1.5 Дополнительные реакции образования гамма-излучения	22
1.5.1 Тормозное излучение	22
1.5.2 Реакции взаимодействия с частицами.	22
Литература	23
Глава 2. Взаимодействие гамма-излучения с веществом	25
2.1 Введение	25
2.2 Экспоненциальное ослабление	25
2.2.1 Основной закон ослабления гамма-излучения	25
2.2.2 Массовый коэффициент ослабления	27
2.3 Процессы взаимодействия.	29
2.3.1 Фотоэлектрическое поглощение	29
2.3.2 Комптоновское рассеяние	31
2.3.3 Образование пар	34
2.3.4 Полный массовый коэффициент ослабления	35
2.4 Фильтры	36
2.5 Защита	38
Литература	39
Глава 3. Детекторы гамма-излучения	41
3.1 Введение	41
3.2 Типы детекторов	41

3.2.1 Газонаполненные детекторы	41
3.2.2 Сцинтилляционные детекторы	43
3.2.3 Твердотельные детекторы	44
3.3 Характеристики регистрируемых спектров	49
3.3.1 Общий отклик детектора	49
3.3.2 Спектральные характеристики	51
3.3.3 Разрешение детектора	53
3.3.4 Эффективность детектора	56
3.4 Выбор детектора	60
Литература	61

Глава 4. Аппаратура для гамма-спектрометрии. 63

4.1 Введение	63
4.2 Выбор детектора	65
4.3 Высоковольтные источники напряжения смещения	66
4.4 Предусилитель	67
4.5 Усилитель	71
4.5.1 Схема "полюс-ноль"	74
4.5.2 Цепь восстановления базового уровня	75
4.5.3 Цепь режекции наложений	76
4.5.4 Усовершенствование схемы усилителей	78
4.6 Одноканальный анализатор	79
4.7 Счетчики, пересчетные устройства, таймеры и измерители скорости счета	81
4.8 Многоканальный анализатор	83
4.8.1 Аналого-цифровой преобразователь	83
4.8.2 Стабилизаторы спектра	86
4.8.3 Память многоканального анализатора, дисплей и анализ данных	88
4.9 Вспомогательное электронное оборудование	90
4.10 Заключительные замечания	91
Литература	92

Глава 5. Основные вопросы пассивного анализа гамма-излучения 95

5.1 Энергетическая градуировка и определение положения пика	95
5.1.1 Введение	95
5.1.2 Линейная энергетическая градуировка	100
5.1.3 Определение положения пика (центроиды)	101
5.1.4 Визуальное определение положения пика	102
5.1.5 Графическое определение положения пика	102
5.1.6 Определение положения пика методом первых моментов	104
5.1.7 Определение положения пика с помощью метода пяти каналов	105
5.1.8 Определение положения пика с помощью подгонки линеаризованной функцией Гаусса	106
5.1.9 Определение положения пика с использованием подгонки параболизированной функцией Гаусса	108
5.1.10 Определение положения пика с помощью сложных программ подгонки спектра	111

5.2 Измерения разрешения детектора	112
5.2.1 Введение	112
5.2.2 Определение ширины пика с помощью визуальной оценки изображения на дисплее МКА	113
5.2.3 Графическое определение ширины пика	115
5.2.4 Определение ширины пика с помощью аналитической интерполяции	115
5.2.5 Определение ширины пика с помощью метода вторых моментов	117
5.2.6 Определение ширины пика с помощью подгонки линейаризованной функцией Гаусса	118
5.2.7 Определение ширины пика с помощью подгонки параболаризованной функцией Гаусса	118
5.3 Определение площади пика полного поглощения	118
5.3.1 Введение	118
5.3.2 Выбор рассматриваемых областей	119
5.3.3 Вычитание линейного комптоновского фона	119
5.3.4 Вычитание сглаженной ступеньки комптоновского фона	122
5.3.5 Вычитание комптоновского фона при использовании единственной рассматриваемой области фона	122
5.3.6 Вычитание комптоновского фона с помощью процедуры двух стандартных образцов	124
5.3.7 Использование сумм числа отсчетов в рассматриваемых областях для измерения площадей пиков	124
5.3.8 Использование простых подгонок функцией Гаусса для измерения площади пика	127
5.3.9 Использование известных параметров формы для измерения площадей пиков в мультиплексах	127
5.3.10 Использование сложных вычислительных программ для измерения площади пика	129
5.4 Поправки на наложение импульсов и просчеты	130
5.4.1 Введение	130
5.4.2 Зависимость просчетов от входной загрузки	132
5.4.3 Пропускная способность спектрометрических систем	133
5.4.4 Методы введения поправок. Общие замечания	138
5.4.5 Методы введения поправки на наложения. Электроника	139
5.4.6 Введение поправок на мертвое время и наложения импульсов с помощью генератора импульсов	139
5.4.7 Метод образцового источника для введения поправок на мертвое время и наложения	143
5.5 Эффекты закона обратного квадрата	146
5.6 Измерения эффективности детектора	149
5.6.1 Абсолютная эффективность регистрации пика полного поглощения	149
5.6.2 Собственная эффективность регистрации пика полного поглощения энергии	150
5.6.3 Относительная эффективность	151
5.6.4 Эффективность по отношению к детектору NaI(Tl) с чувствительным объемом $\varnothing 7,65 \times 7,65$ см	152
5.6.5 Эффективность в зависимости от энергии и положения	153
Литература	153

Глава 6. Процедуры учета ослабления	155
6.1 Введение	155
6.2 Процедуры	156
6.2.1 Предварительные замечания	156
6.2.2 Общее описание процедуры анализа	156
6.2.3 Необходимые требования при определении коэффициента поправки на самоослабление	157
6.2.4 Методы определения линейного коэффициента ослабления образца	160
6.3 Формальное определение коэффициента поправки на самоослабление	162
6.3.1 Общее определение	162
6.3.2 Удобные типовые формы образцов	162
6.4 Основные параметры коэффициента поправки на самоослабление	163
6.5 Аналитические зависимости для коэффициента поправки на самоослабление в дальней геометрии	165
6.5.1 Образцы в форме пластины	166
6.5.2 Цилиндрические образцы	167
6.5.3 Образцы сферической формы	168
6.6 Численные расчеты для ближней геометрии	168
6.6.1 Общие положения	168
6.6.2 Одномерная модель	169
6.6.3 Двухмерная модель	172
6.6.4 Трехмерная модель	173
6.6.5 Приближенные формулы и интерполяция	174
6.6.6 Влияние абсолютной и относительной погрешностей при расчете коэффициента поправки на самоослабление	177
6.6.7 Точность определения коэффициента поправки на самоослабление и полной скорректированной скорости счета	179
6.7 Факторы, определяющие требуемое количество стандартных образцов	180
6.8 Методы, использующие отношения интенсивностей гамма-излучений	182
6.9 Примеры анализа	183
6.9.1 Удобные сочетания гамма-излучений для анализа, пропускания и опорных пиков	183
6.9.2 Интерполяция и экстраполяция коэффициента пропускания излучения	183
6.9.3 Анализ урана-235 в дальней геометрии	185
6.9.4 Анализ раствора плутония-239 в ближней геометрии	186
6.9.5 Сегментное сканирование с поправкой на пропускание излучения	188
Литература	190
Глава 7. Измерение обогащения урана	193
7.1 Введение	193
7.2 Излучение образцов урана	194
7.3 Методика гамма-измерений бесконечных образцов	194

7.3.1 Однокомпонентная задача (металлический уран)	197
7.3.2 Двухкомпонентная задача (уран и материал матрицы)	198
7.3.3 Аппаратура и методика для бесконечных образцов. Применения	199
7.4 Методики анализа по отношению пиков	203
7.4.1 Теория	203
7.4.2 Применения	203
7.4.3 Выводы по методикам отношения пиков	204
7.5 Методики измерения обогащения урана в газовой фазе	205
7.6 Измерения обогащения по нейтронному излучению	207
7.7 Поправки на ослабление в стенках контейнера	208
7.7.1 Прямое измерение толщины стенки	208
7.7.2 Методика измерения отношения собственных гамма-линий	209
7.7.3 Измерения баллонов с UF ₆	210
7.8 Распространение приемов измерения обогащения урана на другие области применения	212
7.8.1 Измерение концентрации	212
7.8.2 Соотношение компонентов в смешанном оксидном топливе	212
Литература	213

Глава 8. Гамма-спектрометрия изотопного состава

плутония	217
8.1 Введение	217
8.2 Основные сведения	217
8.2.1. Характеристики распада изотопов плутония	217
8.2.2 Характеристики распада изотопа ²⁴¹ Pu	218
8.2.3. Определение концентрации изотопа ²⁴² Pu	219
8.2.4 Спектральная интерференция	219
8.2.5 Практическое применение измерений изотопного состава плутония	219
8.3 Спектральные области, используемые для изотопных измерений	221
8.3.1. Область энергии 40 кэВ	221
8.3.2. Область энергии 100 кэВ	226
8.3.3 Область энергии 125 кэВ	228
8.3.4 Область энергии 148 кэВ	230
8.3.5 Область энергии 160 кэВ	232
8.3.6 Область энергии 208 кэВ	234
8.3.7 Область энергии 332 кэВ	235
8.3.8 Область энергии 375 кэВ	237
8.3.9 Область энергии 640 кэВ	237
8.4 Основы измерений	239
8.4.1 Измерение изотопных отношений	239
8.4.2 Измерение абсолютной массы изотопа	243
8.4.3 Изотопная корреляция ²⁴² Pu	243
8.5 Получение данных	244
8.5.1 Электроника	244
8.5.2 Детекторы	244
8.5.3 Фильтры	245

8.5.4	Скорость счета и геометрия образец/детектор	245
8.5.5	Время измерения	246
8.6	Спектральный анализ	246
8.6.1	Суммирование по рассматриваемой области	246
8.6.2	Подгонка пика	247
8.6.3	Анализ по функции соответствия	249
8.7	Приборное оснащение.	250
8.7.1	Компания Рокуэлл-Хэнфорд.	250
8.7.2	Лос-Аламосская национальная лаборатория	252
8.7.3	Установка Маундской лаборатории	256
8.7.4	Ливерморская национальная лаборатория им. Лоуренса	259
8.7.5	Обзор погрешностей измерений	262
	Литература	262

Глава 9. Плотнометрия 267

9.1	Введение	267
9.2	Моноэнергетическая плотнометрия	268
9.2.1	Измерение концентрации и толщины	268
9.2.2	Точность измерений	269
9.3	Многоэнергетическая плотнометрия	271
9.3.1	Анализ двухэнергетического случая	271
9.3.2	Точность измерения	272
9.3.3	Распространение на случай большего числа значений энергий	272
9.4	Плотнометрия по краю поглощения	272
9.4.1	Описание методики измерений	274
9.4.2	Точность измерения	276
9.4.3	Чувствительность измерения	277
9.4.4	Эффекты матрицы	279
9.4.5	Выбор методики измерений	282
9.4.6	Источники излучения	282
9.5	Моноэнергетические плотнометры	283
9.6	Двухэнергетические плотнометры.	284
9.7	Плотнометры по краю поглощения	285
9.7.1	Плотнометры по К-краю поглощения	286
9.7.2	Плотнометры по L _{III} -краю поглощения	294
	Литература	300

Глава 10. Рентгенофлуоресцентный анализ 305

10.1	Введение	305
10.2	Теория.	306
10.2.1	Образование рентгеновского излучения.	306
10.2.2	Выход флуоресценции.	307
10.2.3	Пропускание фотонов	308
10.2.4	Геометрия измерений.	312
10.3	Типы источников	313
10.4	Поправка на ослабление в образце	317
10.4.1	Эффекты ослабления в образце	317
10.4.2	Основное уравнение анализа	318

10.4.3 Методы поправки на ослабление	320
10.5 Области применения и аппаратура	322
Литература	326
Глава 11. Природа нейтронного излучения	329
11.1 Введение	329
11.2 Спонтанное и вынужденное деление ядер	329
11.3 Нейтроны и гамма-кванты деления	332
11.4 Нейтроны, испускаемые в реакциях (α, n)	336
11.5 Нейтроны других ядерных реакций	343
11.6 Изотопные нейтронные источники.	345
11.7 Выводы	348
Литература	349
Глава 12. Взаимодействие нейтронов с веществом	353
12.1 Введение	353
12.2 Микроскопические взаимодействия	353
12.2.1 Понятие сечения взаимодействия	353
12.2.2 Соотношение энергия-скорость для нейтронов	354
12.2.3 Типы взаимодействий	355
12.2.4 Зависимость сечения взаимодействия от энергии	358
12.3 Макроскопические взаимодействия	361
12.3.1 Макроскопические сечения	361
12.3.2 Длина свободного пробега и скорость реакции.	364
12.4 Эффекты замедления в большом объеме вещества	365
12.5 Эффекты размножения в массивных образцах вещества	369
12.6 Защита от нейтронов.	372
12.7 Методы расчета переноса нейтронов.	374
12.7.1 Метод Монте-Карло	374
12.7.2 Метод дискретных ординат	375
Литература	376
Глава 13. Детекторы нейтронов.	377
13.1 Механизмы регистрации нейтронов	377
13.2 Основные свойства газонаполненных детекторов.	378
13.3 Чувствительность детекторов нейтронов к гамма-излучению	382
13.4 Газонаполненные детекторы	386
13.4.1 Детекторы тепловых нейтронов на основе ^3He и BF_3	386
13.4.2 Детекторы быстрых нейтронов, наполненные ^4He и CH_4	392
13.4.3 Камеры деления	394
13.4.4 Детекторы с покрытием из ^{10}B	396
13.5 Пластмассовые и жидкие сцинтилляторы	397
13.5.1 Введение.	397
13.5.2 Механизмы взаимодействия нейтронов и гамма-квантов с материалом детектора	398

13.5.3 Дискриминация по форме импульса	401
13.6 Другие типы детекторов нейтронов	404
13.7 Измерение энергетических спектров нейтронов	406
13.7.1 Введение.	406
13.7.2 Методы измерений	406
Литература	407

Глава 14. Основы регистрации полного потока нейтронов . . 409

14.1 Введение	409
14.1.1 Теория регистрации полного потока нейтронов	410
14.1.2 Сравнение методов регистрации полного потока нейтронов и нейтронных совпадений.	410
14.2 Источники образования первичных нейтронов	412
14.2.1 Соединения плутония	412
14.2.2 Соединения урана	415
14.2.3 Примеси	419
14.2.4 Эффекты влияния энергетического спектра нейтронов	422
14.2.5 Эффекты тонкой мишени	424
14.3 Перенос нейтронов в образце	425
14.3.1 Умножение нейтронов утечки	426
14.3.2 Спектр нейтронов утечки	429
14.4 Эффективность регистрации нейтронов	431
14.4.1 Расположение гелиевых счетчиков в замедлителе.	431
14.4.2 Конструкция замедлителя.	432
14.4.3 Влияние энергетического спектра нейтронов.	433
Литература	436

Содержание 2 части

Глава 15. Приборы регистрации полного потока нейтронов и их применение	439
15.1 Введение	439
15.2 Направленный нейтронный зонд SNAP.	439
15.2.1 Контроль металлического плутония	442
15.2.2 Контроль баллонов с UF ₆	442
15.2.3 Измерение отложений	444
15.2.4 Другие применения	444
15.3 Плоские детекторы	445
15.3.1 Контроль обогащения UF ₆	445
15.3.2 Измерение отложений	447
15.4 Счетчик с 4π-геометрией	447
15.4.1 Счетчик для контейнеров	448
15.4.2 Измерение источников теплоты на основе ²³⁸ Pu	450
15.5 Измерение низкоактивных отходов	451
15.5.1 Чувствительность регистрации	452
15.5.2 Анализ 55-галонных бочек	452
15.5.3 Анализ больших упаковок.	453
15.6 Специальные применения	454
15.6.1 Анализатор водорода на основе источника ²⁵² Cf	454
15.6.2 Определение влажности с помощью кольцевого отношения детектора	456
15.6.3 Энергетически независимый "длинный" счетчик	457
Литература	459
Глава 16. Принципы регистрации нейтронных совпадений	463
16.1 Введение	463
16.2 Характеристики последовательности нейтронных импульсов.	464
16.2.1 Идеальные и действительные последовательности импульсов.	465
16.2.2 Распределение интервалов	466
16.2.3 Распределение Росси-альфа	467
16.3 Основные особенности схем совпадений	468
16.3.1 Электронные ворота	468
16.3.2 Продлеваемое и непродлеваемое мертвое время	469
16.3.3 Взаимокорреляционные и автокорреляционные схемы	470
16.4 Три основные схемы регистрации совпадений	471
16.4.1 Схема с переменным мертвым временем.	471
16.4.2 Схема одновибратора с продлеваемым мертвым временем	471

16.4.3	Логика уменьшенной дисперсии.	473
16.5	Схема анализа совпадений на основе сдвигового регистра	474
16.5.1	Принцип работы сдвигового регистра	474
16.5.2	Ворота R+A	474
16.5.3	Ворота A	476
16.5.4	Чистый отклик совпадений R.	477
16.6	Поправки на мертвое время сдвигового регистра	479
16.6.1	Мертвое время детектора и усилителя	479
16.6.2	Смещение из-за наложения импульсов	480
16.6.3	Мертвое время цифровой электроники	481
16.6.4	Эмпирические формулы поправки на мертвое время.	482
16.6.5	Электроника АМРТЕК и выравнивающий буфер.	484
16.7	Неопределенности из-за статистического характера процесса регистрации	485
16.7.1	Простое уравнение для оценки погрешности сдвигового регистра	486
16.7.2	Неопределенности для пассивного и активного счета совпадений	487
16.8	Эффекты саморазмножения в образце.	488
16.8.1	Источник эффекта саморазмножения	488
16.8.2	Результаты вычислений	489
16.8.3	Влияние различных эффектов на отклик сдвигового регистра	493
16.8.4	Простой коэффициент поправки на саморазмножение.	494
16.8.5	Применения и ограничения простой поправки.	495
16.9	Другие эффекты матрицы	496
	Литература	498

Глава 17. Приборы нейтронных совпадений и их применение 501

17.1	Основы проектирования установок нейтронных совпадений	501
17.2	Пассивные системы регистрации нейтронных совпадений.	503
17.2.1	Установка для контроля 200-литровых бочек	505
17.2.2	Высокоуровневый счетчик нейтронных совпадений HLNCC	506
17.2.3	Усовершенствованный высокоуровневый счетчик нейтронных совпадений HLNCC-II.	508
17.2.4	Специальные блоки детектирования для контроля элементов быстрых критических стенов	512
17.2.5	Специальные блоки детектирования для контроля топлива реакторов на быстрых нейтронах	514
17.2.6	Счетчик совпадений для инвентарных измерений ISCC.	516
17.2.7	Установки для контроля растворов нитрата плутония.	520
17.2.8	Двухдиапазонный счетчик совпадений DRCC	522
17.3	Активные системы для регистрации нейтронных совпадений.	525
17.3.1	Активный колодезный счетчик нейтронных совпадений AWCC	525
17.3.2	Воротниковый счетчик нейтронных совпадений для урана UNCC	529
17.3.3	Пассивный воротниковый счетчик нейтронных совпадений PNCC	532
17.3.4	Монитор для входного контроля баллонов с UF ₆ RAM	534
	ЛИТЕРАТУРА	536

Глава 18. Измерения облученного топлива	539
18.1 Введение	539
18.2 Характеристики реакторного топлива	540
18.2.1 Физическое описание	540
18.2.2 Определение выгорания и глубины выгорания	542
18.2.3 Выход продуктов деления	542
18.3 Косвенные характеристики выгорания топлива	548
18.3.1 Физические атрибутивные признаки	548
18.3.2 Черенковское излучение	548
18.3.3 Интенсивность гамма-излучения отдельных продуктов деления	549
18.3.4 Полная интенсивность гамма-излучения	551
18.3.5 Отношение активностей продуктов деления	552
18.3.6 Полный выход нейтронов	554
18.4 Гамма-измерения облученного топлива	557
18.4.1 Измерения полной интенсивности гамма-излучения	557
18.4.2 Измерения интенсивности высокоэнергетического гамма-излучения	558
18.4.3 Гамма-спектрометрия высокого разрешения	558
18.4.4 Измерения черенковского излучения	560
18.5 Нейтронные измерения облученного топлива	562
18.5.1 Вилочный детектор и блок электроники ION-1	563
18.5.2 Нейтронные измерения выгорания	564
18.6 Определение содержания делящихся материалов в облученном топливе	566
18.6.1 Косвенное определение характеристик топлива с помощью пассивных измерений выгорания	566
18.6.2 Определение характеристик топлива методом активной нейтронной подсветки	567
18.7 Обзор методов неразрушающего анализа для контроля облученного топлива	571
Литература	571
Глава 19. Радиационные мониторы контроля периметра	575
19.1 Введение	575
19.2 Влияние радиационного фона	577
19.3 Характеристики сигналов систем контроля за перемещением ядерных материалов и радиоактивного загрязнения	579
19.3.1 Источники излучения	579
19.3.2 Сигналы, изменяющиеся во времени	579
19.4 Анализ сигналов	582
19.4.1 Регистрация излучения	582
19.4.2 Аналоговые методы регистрации	583
19.4.3 Цифровые методы регистрации	583
19.4.4 Долговременный мониторинг	585
19.5 Детекторы излучения	586

19.5.1 Пластмассовые сцинтилляторы	586
19.5.2 Проточные газоразрядные детекторы.	587
19.6 Составные части мониторов контроля периметра	588
19.6.1 Составные части и их функции	588
19.6.2 Электроника для обработки сигналов	589
19.6.3 Источники питания.	591
19.6.4 Диагностика	591
19.7 Градуировка мониторов	592
19.7.1 Градуировка сцинтилляционных детекторов	592
19.7.2 Градуировка одноканального анализатора	592
19.7.3 Периодический контроль градуировки.	593
19.8 Методы оценки мониторов	593
19.9 Примеры мониторов контроля периметра	594
19.9.1 Ручные мониторы контроля периметра	594
19.9.2 Автоматические пешеходные мониторы	596
19.9.3 Автоматические транспортные мониторы.	596
19.9.4 Обзор характеристик мониторов.	598
Литература	599
Глава 20. Качественные и полуколичественные измерения	601
20.1 Введение	601
20.2 Измерение атрибутивных признаков ядерных материалов.	602
20.3 Количественная сортировка отходов.	604
20.3.1 Цель.	604
20.3.2 Чувствительность к гамма-квантам и нейтронам	604
20.4 Подтверждающие измерения	606
20.4.1 Цель.	606
20.4.2 Варианты неразрушающего анализа	606
20.4.3. Современная практика	608
20.5 Отложения ядерного материала.	610
20.5.1 Причины и механизмы.	611
20.5.2 Величина отложения	611
20.5.3 Статистическое моделирование	612
20.6 Искусство и наука измерения отложений.	615
20.6.1 Полезные характеристики излучений	616
20.6.2 Детекторы и приборы считывания	618
20.6.3 Процедуры измерения отложений.	620
20.6.4 Градуировка для точечной, линейной зоны и зоны в виде плоскости.	621
20.6.5 Стандартные образцы для градуировки и контрольные источники	624
20.6.6 Поправки на ослабление и самопоглощение	625
20.6.7 Оценка погрешности	627
Литература	628
Глава 21. Принципы калориметрического анализа	631
21.1 Введение	631

21.2 Выработка теплоты радиоизотопами.	632
21.2.1 Альфа-частицы.	633
21.2.2 Бета-частицы	633
21.2.3 Гамма-кванты.	634
21.2.4 Другие виды излучений	634
21.3 Определение удельной мощности	634
21.3.1 Определение удельной мощности	634
21.3.2 Эффективная удельная мощность.	636
21.4 Измерение теплоты с помощью калориметра	638
21.4.1 Адиабатические калориметры	639
21.4.2 Изотермические калориметры	639
21.5 Типы калориметров теплового потока.	640
21.5.1 Общие электрические характеристики.	640
21.5.2 Полные мостовые двухэлементные калориметры	640
21.5.3 Мостовые калориметры с верхней/нижней камерами	642
21.5.4 Градиентный мостовой калориметр.	643
21.6 Методы работы с калориметрами теплового потока	645
21.6.1 Метод замещения	645
21.6.2 Дифференциальный метод	646
21.6.3 Метод сервоконтроля постоянной температуры	647
21.7 Время анализа	647
21.7.1 Конструкция калориметра и метод работы	648
21.7.2 Предварительная подготовка образца	649
21.7.3 Прогнозирование конечной точки.	650
21.8 Градуировка калориметра	651
21.8.1 Электрическая градуировка.	651
21.8.2 Градуировка с использованием радиоизотопных источников теплоты.	652
21.9 Источники погрешностей.	652
Литература	654

Глава 22. Приборы для калориметрического анализа. 655

22.1 Введение	655
22.1.1 Компоненты систем калориметрического анализа	655
22.1.2 Рассмотрение конструкции калориметров	656
22.2 Небольшие калориметры для анализа в лабораторных условиях.	656
22.2.1 Маундский аналитический калориметр	657
22.2.2 Аргоннский калориметр для небольших образцов	658
22.3 Передвижные калориметры	659
22.3.1 Маундский передвижной калориметр	659
22.3.2 Аргоннский калориметр для анализа материалов в балк-форме	661
22.4 Калориметры для работы в заводских условиях	663
22.4.1 Маундский серийный двухэлементный мостовой калориметр.	663
22.4.2 Маундский калориметр для совместных измерений изотопов	665
22.4.3 Серийные калориметры завода Рокки Флэтс.	666
22.4.4 Маундские градиентные мостовые калориметры	667
22.5 Калориметры для топливных стержней.	669

22.5.1 Аргонный калориметр для топливных стержней	669
22.5.2 Калориметр фирмы "Дженерал Электрик" для облученных топливных сборок.	671
Литература	672
Глава 23. Руководство по применению методов неразрушающего анализа	675
23.1 Введение	675
23.2 Возможности некоторых пассивных и активных методик неразрушающего анализа	675
23.3 Типы ядерных материалов и применимые методики неразрушающего анализа	680
Литература	694
Предметный указатель	695

Глава 1

Природа гамма-излучения

Дуглас Райлли
(Переводчик Л. Г. Савосин)

1.1 ГАММА-ИЗЛУЧЕНИЕ И СПЕКТР ЭЛЕКТРОМАГНИТНОГО ИЗЛУЧЕНИЯ

Гамма-излучение представляет собой высокоэнергетическое электромагнитное излучение, испускаемое при переходе ядра атома из возбужденного состояния в стабильное или менее возбужденное. Электромагнитное излучение, как таковое, охватывает такие различные явления, как радиоволны, телевидение, микроволны, инфракрасное излучение, свет, ультрафиолетовое излучение, рентгеновские лучи и гамма-излучение. Эти излучения распространяются в вакууме со скоростью света. Они могут быть описаны как волновые процессы в виде колебаний электрического и магнитного полей, аналогичных таким механическим колебаниям, как волны на воде или звуковые волны. Они отличаются друг от друга только по частоте колебаний. Несмотря на различные названия, электромагнитное излучение в действительности образует непрерывный спектр, простирающийся от низкочастотных радиоволн с частотой колебаний несколько герц до гамма-излучения с частотой колебаний 10^{18} Гц и более (см. рис. 1.1). Для описания электромагнитных колебаний используются такие параметры, как частота колебаний, длина волны и энергия. Эти параметры связаны между собой и взаимозаменяемы. На практике для описания радиоволн обычно используют частоту колебаний или длину волны, для световых волн — цвет или длину волны (вклю-



Рис. 1.1. Спектр электромагнитного излучения, отражающий соотношение между параметрами гамма-излучения, рентгеновского излучения, световых волн и радиоволн

чая инфракрасный и ультрафиолетовый свет), а для рентгеновских лучей и гамма-излучения — энергию.

Видимый свет испускается при изменении химического состояния элементов и соединений. Такие изменения происходят с внешними и наименее связанными с ядром электронами атома. Испускаемый свет является характеристикой излучающих элементов и соединений и имеет энергию около 1 эВ (электрон-вольт — единица измерения энергии, равная кинетической энергии электрона, получившего ускорение при прохождении разности потенциалов в 1 В. 1 электрон-вольт равен $1,602 \times 10^{-19}$ джоулей. Для описания атомных и молекулярных процессов также используются кратные электронвольту единицы — кэВ (10^3 эВ) и МэВ (10^6 эВ)). Рентгеновское и гамма-излучения обладают очень высокой энергией, охватывающей диапазон от 10 кэВ и более. Рентгеновское излучение испускается при изменениях в состоянии внутренних и более сильно связанных электронов атома, тогда как гамма-излучение испускается при изменении в состоянии ядра атома. При этом энергия испускаемого излучения является характеристикой излучающих элементов и ядер.

Это высокоэнергетическое электромагнитное излучение получило известность в 1895 г. в Германии после открытия Вильгельмом Рентгеном излучения, названного им X-лучами (теперь эти лучи называются рентгеновским излучением — прим. пер.). Наблюдая свечение экрана из сульфида цинка, расположенного около разрядной электронно-лучевой трубки, Рентген обнаружил, что вызывающее свечение излучение зависит от материала анода и напряжения на трубке, и что это излучение не отклоняется ни электрическим, ни магнитным полем и легко проникает сквозь плотное вещество. В следующем году во Франции Анри Беккерелем была открыта естественная радиоактивность, когда он обнаружил, что соли урана своим излучением воздействуют на фотопластинку и затемняют ее. Изучая эти явления Мария и Пьер Кюри выделили и идентифицировали радиоактивные элементы полоний и радий. Они установили, что эти явления радиоактивности характеризуют элемент, а не его химическое состояние.

Обнаруженные "радиоактивные лучи" интенсивно изучались во многих лабораториях.

В 1899 г. в Англии Эрнест Резерфорд открыл, что 95 % излучения эффективно поглощается 0,02 мм алюминия, а 50 % оставшегося излучения поглощается 5 мм алюминия или 1,5 мм меди. Резерфорд назвал первую составляющую излучения "альфа", а вторую, обладающую большей проникающей способностью, — "бета"-излучением. Оба излучения отклоняются электрическим и магнитным полями, но в противоположные направления. Это означало, что излучения несут электрический заряд. В 1900 г. Пол Уиллард и Анри Беккерель заметили, что фотграфическая пластинка подвергается воздействию радиоактивного вещества даже когда она экранирована 20 см железа или 2-3 см свинца. Они также обнаружили, что это проникающее излучение не отклоняется магнитным полем. В 1903 г. Резерфорд назвал эту составляющую излучения "гамма" и заявил, что "гамма-излучение, вероятно, подобно рентгеновским лучам". Таким образом, эти три излучения были выделены и названы тремя первыми буквами греческого алфавита: α , β и γ .

Как следует из краткого описания открытия, гамма-излучение часто сопровождает самопроизвольные альфа- и бета-распады нестабильных ядер. Рентгеновское излучение идентично гамма-излучению, за исключением того, что оно

испускается при перестройке электронных структур атома, а не при изменениях структуры ядра атома. Значение энергии рентгеновского излучения является уникальной характеристикой каждого элемента, но одинаково для различных изотопов одного элемента. Рентгеновское излучение часто сопровождает процессы ядерного распада, при которых происходит разрушение электронной оболочки атома.

Интенсивность и энергетический спектр гамма-излучения, испускаемого при самопроизвольном распаде ядра, являются уникальными характеристиками этого ядра. Эти характеристики лежат в основе большинства методов анализа с помощью гамма-излучения: путем подсчета гамма-квантов с определенной энергией оказывается возможным определить число ядер, которые испускают данное излучение.

1.2 ХАРАКТЕРИСТИКИ ЯДЕРНОГО РАСПАДА

1.2.1 Процессы ядерного распада. Общие сведения

Предполагается, что атомное ядро представляет собой связанную структуру, состоящую из протонов и нейтронов, имеющих примерно одинаковые массы и отличающихся только зарядом: протоны имеют положительный, равный единице, заряд, нейтроны — электрически нейтральны. Разные элементы имеют ядра с различным числом нейтронов и протонов. Число протонов в ядре называется атомным номером и обозначается символом Z . В нейтральном атоме число протонов равно числу электронов. Число нейтронов в ядре атома обозначается символом N . Общее число нуклонов (протонов и нейтронов) в ядре называется массовым числом атома и обозначается символом A ($A=Z+N$).

При всех процессах ядерного распада число нестабильных ядер данного элемента уменьшается со временем по экспоненциальному закону:

$$n = n_0 e^{-\lambda t}, \quad (1.1)$$

где n — число ядер данного элемента в момент времени t ;

n_0 — число ядер при $t=0$;

λ — постоянная распада, параметр, характеризующий экспоненциальный процесс распада.

Каждый вид атомного ядра имеет определенную постоянную распада. Радиоактивный распад обычно описывается с помощью понятия периода ядерного полураспада $T_{1/2}$, который связан с постоянной распада λ соотношением

$$T_{1/2} = (\ln 2) / \lambda. \quad (1.2)$$

Период полураспада — это время, необходимое для того, чтобы число нестабильных ядер данного элемента уменьшилось наполовину (период полураспада обычно приводится в таблицах ядерных данных). Скорость распада, или удельную активность, можно получить из периода полураспада следующим образом:

$$R = \frac{1,32 \times 10^{16}}{A \times T_{1/2}}, \quad (1.3)$$

где R — скорость, выраженная числом распадов в секунду на грамм;

A — массовое число атома;

$T_{1/2}$ — период полураспада в годах.

Уравнение (1.3) часто используется для оценки удельной активности на грамм образца.

Альфа- и бета-распады ядер данного элемента не всегда сопровождаются испусканием гамма-излучения. Доля распадов, сопровождающихся испусканием гамма-лучей определенной энергии, называется интенсивностью ветвления. Например, наиболее интенсивное гамма-излучение, испускаемое ^{235}U , имеет энергию 185,7 кэВ и интенсивность ветвления 54 %. Уран-235 распадается с испусканием альфа-частицы с периодом полураспада $7,038 \times 10^8$ года. Уравнение (1.3), таким образом, дает скорость испускания альфа-частиц, равную $7,98 \times 10^4$ $\alpha/\text{г}\cdot\text{с}$. Только 54 % испусканий альфа-частиц сопровождается излучением гамма-квантов с энергией 185,7 кэВ. Следовательно, удельный выход гамма-излучения составляет $4,3 \times 10^4$ $\gamma/\text{г}\cdot\text{с}$.

Для неразрушающего анализа ядерных материалов в балк-форме из всех видов излучений, сопровождающих естественный распад, интерес представляет только гамма-излучение, поскольку альфа- и бета-частицы имеют очень короткую длину пробега в плотных материалах. Например, в металлической меди длины пробега следующие:

Альфа-частицы с энергией 5 МэВ: 0,01 мм или $0,008$ $\text{г}/\text{см}^2$,

Бета-частицы с энергией 1 МэВ: 0,7 мм или $0,6$ $\text{г}/\text{см}^2$,

Гамма-кванты с энергией 0,4 МэВ: 12 мм или $10,9$ $\text{г}/\text{см}^2$ (средняя длина свободного пробега).

1.2.2 Альфа-распад

Альфа-частица — это дважды ионизированное ядро гелия, которое представляет собой очень стабильную и плотно связанную ядерную структуру. При распаде ядра с испусканием альфа-частицы появляющееся в результате ядро называется дочерним, оно имеет заряд на две единицы меньше и атомную массу на четыре единицы меньше исходного материнского ядра. В общем виде эта реакция может быть представлена следующим образом:



Такой распад возможен только, если масса нейтрального материнского атома больше, чем сумма масс дочернего ядра и нейтрального атома ${}^4_2\text{He}$. Разность масс между материнским ядром и продуктами реакции распада называется энергией реакции Q и равняется кинетической энергии продуктов распада:

$$Q = (M_p - M_d - M_{\text{He}})c^2, \quad (1.5)$$

где $M_{\text{p,d,He}}$ — массы нейтральных атомов материнского, дочернего ядер и атома ${}^4_2\text{He}$;

c — скорость света.

При распаде материнского ядра большую часть энергии реакции Q получает альфа-частица из-за ее малой массы:

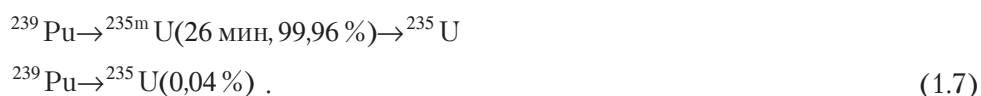
$$E_\alpha = Q(A - 4) / A . \quad (1.6)$$

Оставшаяся часть энергии затрачивается на отдачу дочернего ядра.

Из 160 известных альфа-излучателей большинство являются тяжелыми ядрами с атомными номерами более 82. Энергия испускаемой альфа-частицы бывает от 4 до 10 МэВ и период полураспада — от 10^{-6} с до 10^{10} лет. Альфа-частицы высокой энергии испускаются при распаде короткоживущих ядер.

Дочернее ядро непосредственно после распада материнского ядра может находиться либо в основном, либо в возбужденном состоянии. В последнем случае ядро может изменять свое возбуждение (релаксировать) по одному из двух механизмов: испусканием гамма-квантов или путем внутренней конверсии. Снятие возбуждения по первому механизму приводит к испусканию одного или более гамма-квантов (обычно, через 10^{-14} с после испускания альфа-частицы) с дискретными значениями энергии, сумма которых равна начальной энергии возбуждения. В процессе внутренней конверсии ядро передает энергию возбуждения непосредственно одному из наиболее сильно связанных электронов атома, обычно электрону К-оболочки. Электрон покидает атом с энергией, равной разности между энергией перехода и энергией связи электрона в атоме. Возникающая при этом вакансия приводит к эмиссии рентгеновского излучения или электронов (называемых Оже-электронами) с характеристическим спектром энергии, соответствующим дочернему элементу. Вероятность внутренней конверсии сильно увеличивается с ростом атомного номера Z и с уменьшением энергии возбуждения.

Альфа-распад в некоторых случаях приводит к возбужденному состоянию дочернего ядра, которое сохраняется значительно дольше, чем 10^{-14} с. Если время жизни этого состояния больше, чем 10^{-6} с, оно называется изомером основного состояния ядра. Примером изомера является ядро ^{235m}U , возникающее при альфа-распаде ^{239}Pu :



Обычный вид распада ^{239}Pu ведет сначала к образованию изомера ^{235m}U , который имеет период полураспада 26 мин. Вероятность прямого распада с образованием ^{235}U составляет только 0,04 % на акт распада. Одним из наиболее долгоживущих изомеров является $^{91m}_{41}\text{Nb}$ с периодом полураспада 60 сут.

Все альфа-частицы, гамма-кванты и электроны внутренней конверсии, испускаемые в процессе распада, имеют характерные дискретные спектры энергии. Наблюдение этих характерных спектров показало, что ядра имеют дискретные разрешенные состояния или энергетические уровни аналогично разрешенным состояниям электронов атома. Информация, получаемая в результате различных спектрометрических исследований, позволила разработать схемы ядерных уровней, приводимые в справочниках, например, в "Таблице Изотопов" [1]. Пример на рис. 1.2 представляет нижние энергетические уровни ^{235}U , заполняемые в процессе альфа-распада ^{239}Pu . Эти уровни обуславливают характерный спектр гамма-излучения ^{239}Pu . Следует отметить, что характерный спектр гамма-излучения обычно связывается с материнским или распадающимся ядром, даже если энергии определяются энергетическими уровнями дочерних ядер. Хотя такая практика может показаться запутанной, она является общепринятой для анализа гамма-излучения. Такое смешивание усложняется еще и тем, что обычно используется система обозначений, принятая для рентгеновского излучения, которая связывает характеристическое рентгеновское излучение с дочерним элементом. Вследствие этого, альфа-распад ^{239}Pu приводит к образованию ^{235}U и сопровождается эмиссией гамма-излучения ^{239}Pu и рентгеновского излучения урана.

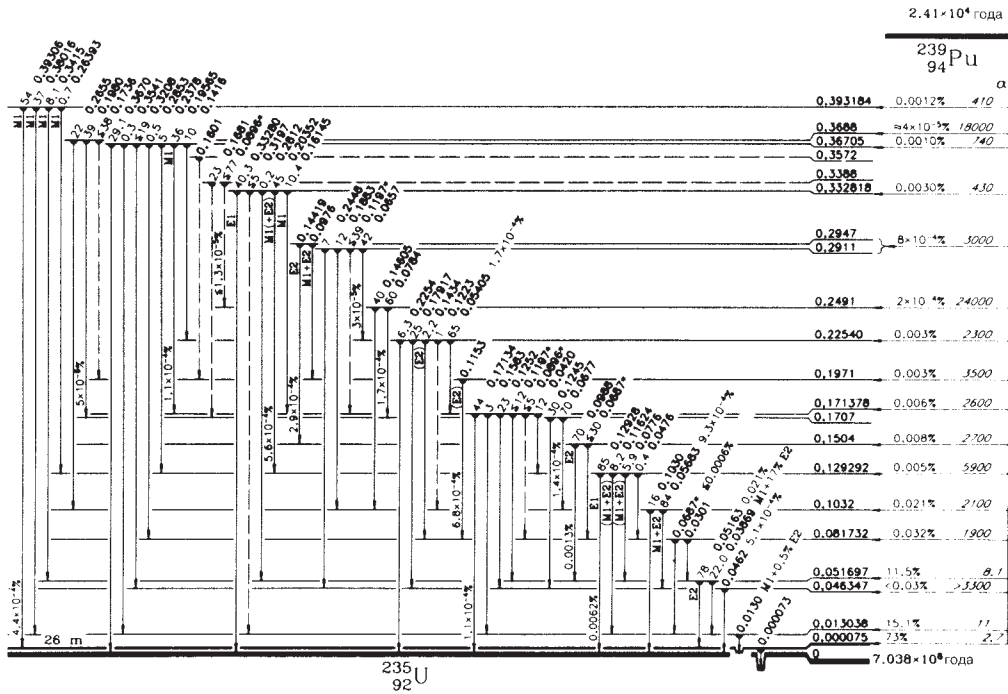


Рис. 1.2. Диаграмма некоторых ядерных энергетических уровней ^{235}U . Эти уровни заполняются при распаде ^{239}Pu и определяют характерный спектр гамма-излучения ^{239}Pu . [1]

1.2.3 Бета-распад

В процессе бета-распада атомный номер Z увеличивается или уменьшается на одну единицу, а массовое число атома A остается постоянным. В результате распада изменяется состояние нейтронов и протонов. Существует три типа бета-распада: β^- , β^+ и электронный захват.

Первым был обнаружен β^- -распад, частица бета-минус оказалась обычным электроном. В процессе бета-распада ядра элементов меняют состояния по следующей схеме:



Процесс β^- -распада можно рассматривать как распад нейтрона на протон, электрон и антинейтрино. Распад энергетически возможен для свободного нейтрона и происходит с периодом полураспада 12,8 мин. Это обычный процесс бета-распада ядер с большим атомным номером и ядер продуктов деления, в которых, как правило, содержится значительно больше нейтронов, чем протонов.

При β^+ -распаде ядро изменяет свое состояние по следующей схеме:



С процессом β^+ -распада конкурирует процесс электронного захвата. Ядро взаимодействует с электроном внутренней оболочки атома и, фактически, захва-

тывает его, преобразуя протон в нейтрон с испусканием нейтрино. Схема этого процесса следующая:



Все нестабильные ядра с атомным номером менее 82 распадаются по крайней мере по одному из этих трех процессов, а иногда и по всем трем (см. рис. 1.3). Бета-распад происходит всегда, когда он возможен энергетически, т.е. если выполняются для масс нейтральных материнских атомов (p) и возможных дочерних атомов (d) следующие условия:

$$\begin{aligned} \beta^- \text{-распад: } M_p &> M_d; \\ \beta^+ \text{-распад: } M_p &> M_d + 2m_e; \\ \text{электронный захват: } M_p &> M_d. \end{aligned} \quad (1.11)$$

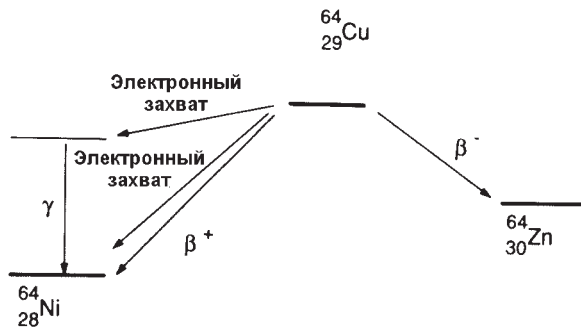


Рис. 1.3. Схема распада ядра ${}^{64}\text{Cu}$, представляющая три возможных типа бета-распада

При бета-распаде дочернее ядро может возникать либо в основном, либо в возбужденном состояниях. В последнем случае возбужденное ядро распадается с испусканием гамма-квантов или снимает возбуждение в процессе внутренней конверсии.

1.3 ОБРАЗОВАНИЕ РЕНТГЕНОВСКОГО ИЗЛУЧЕНИЯ

1.3.1 Модель атома Бора

В упрощенной атомной модели Бора положительно заряженное ядро содержит протоны и нейтроны и имеет радиус порядка $1,4 \times 10^{-15} \text{ (Å}^{1/3}) \text{ м}$ и плотность порядка $2 \times 10^{14} \text{ г/см}^3$. Ядро окружено облаком отрицательно заряженных электронов, расположенных на дискретных, строго определенных энергетических уровнях или орбитах. Радиусы этих орбит находятся в диапазоне от 10^{-9} до 10^{-8} м. Первоначальная модель атома Бора имела строго определенные орбиты и сводилась к знакомой схеме планетарной системы атома. Несмотря на то, что она в настоящее время не является общепринятой, такая конкретная модель полезна для объяснения происхождения рентгеновского излучения.

Различные энергетические уровни обозначаются как K, L₁, L₂, L₃, M₁, ..., M₅ и так далее. В качестве примера рассмотрим представленные на рис. 1.4 энергетические уровни электронов атома урана. Сила электрического взаимодействия между электроном и положительно заряженным ядром изменяется обратно пропорционально квадрату расстояния до ядра, поэтому более близкие к ядру электроны



Рис. 1.4. Электронные энергетические уровни урана. Показан переход между уровнями с испусканием рентгеновских квантов K-серии

имеют более высокую энергию связи электрона E_b . Энергия связи — это энергия, необходимая для удаления электрона из атома. Электроны K-оболочки всегда более сильно связаны с ядром. Хорошее описание энергий каждого энергетического уровня и порядок заполнения уровней для различных элементов дает квантовая механика. Химические свойства элементов определяются пространственным распределением электронов элемента.

В нормальном основном состоянии атом стабилен и не излучает. При перемещении электрона с более высокого на более низкий энергетический уровень происходит испускание характеристического рентгеновского излучения.

1.3.2 Процессы образования рентгеновского излучения

В результате ряда взаимодействий происходит ионизация или удаление электрона из атома. Любые заряженные частицы с высокой энергией при прохождении через вещество взаимодействуют с электронами. С электронами атомов также взаимодействуют фотоны рентгеновского и гамма-излучения. Такие ядерные взаимодействия, как внутренняя конверсия или захват электрона, также могут привести к ионизации атома.

Когда электрон покидает атом, атом переходит в возбужденное состояние с энергией E_{bi} , соответствующей вакансии на i -ом электронном уровне. Эта вакансия может быть заполнена электроном с более слабой связью с внешней орбиты j -го уровня. Такое изменение энергетического уровня сопровождается испусканием рентгеновского кванта — кванта с энергией $E_{bi} - E_{bj}$ или испусканием Оже-электрона с энергией $E_{bi} - 2E_{bj}$. В последнем случае атом передает энергию возбуждения непосредственно электрону внешней орбиты. Доля вакансий на i -ом уровне, вызывающих испускание рентгеновских квантов, называется выходом флюоресценции ω_i . На рис. 1.5 представлено изменение выхода флюоресценции K-оболочки в зависимости от атомного номера элемента. Испускание рентгеновских квантов более вероятно для элементов с высоким Z (для $Z > 70$, $\omega_K > 95\%$).

Вещества с большим значением Z имеют высокий коэффициент внутренней конверсии. Это означает, что при основных видах распада образуются вакансии на внутренних оболочках электронных уровней (обычно K или L) и испускается характеристическое рентгеновское излучение. Так как эти вакансии образуются в дочернем атоме, энергии квантов рентгеновского излучения являются характеристиками дочернего элемента. В веществах с высокой плотностью заряженные частицы (α и β) и гамма-кванты ядерного распада тормозятся исходным (материнским) веществом при взаимодействии с электронами атомов; это приводит к образованию рентгеновского излучения, которое является характеристикой мате-

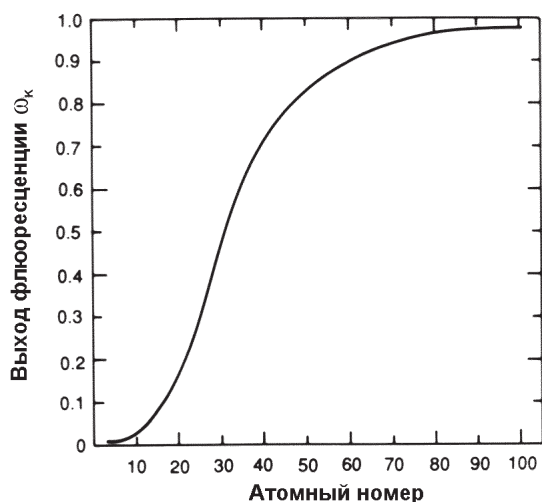


Рис. 1.5. Изменение выхода флюоресценции K-оболочки ω_K с увеличением атомного номера

ринского атома. Металлический плутоний испускает рентгеновское излучение урана вследствие процесса внутренней конверсии, происходящего после альфа-распада. Кроме того, он также испускает рентгеновское излучение плутония в результате флюоресценции, возбуждаемой альфа-частицами.

1.3.3 Спектры характеристического рентгеновского излучения

Каждый элемент испускает спектр характеристического рентгеновского излучения. Все элементы имеют одинаковую структуру спектра излучения, но распределения энергии излучения элементов различны. На рис. 1.6 показаны спектры характеристического рентгеновского излучения урана и свинца.

Первые исследователи явления создали ныне общепринятую систему обозначения рентгеновского излучения. Буква латинского алфавита обозначает конечный уровень, на который переходит электрон; греческая буква с номером показывает начальный энергетический уровень электрона. В табл. 1.1 представлены основные K-линии в спектре рентгеновского излучения урана и плутония. L- и M-линии спектра имеют более низкую энергию и приводятся обычно в справочной литературе.

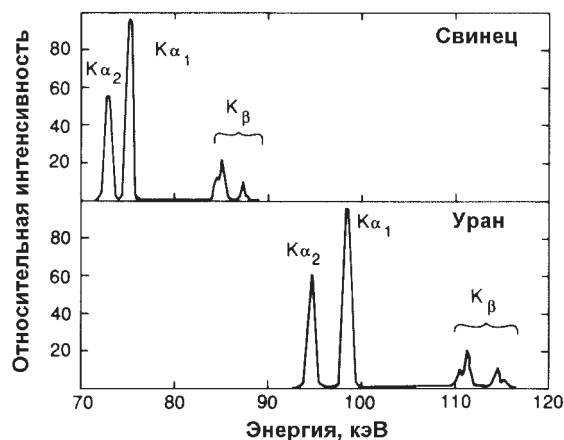


Рис. 1.6. Характеристические рентгеновские спектры свинца и урана. Обратите внимание на подобие кривых и смещение в энергии

Таблица 1.1 – Основные рентгеновские К-линии урана и плутония*

Линия рентгеновско- го излучения	Уровни (конечн. — начальн.)	Энергия, кэВ		Интенсивность**	
		уран	плутоний	уран	плутоний
K _{α2}	K – L ₂	94,67	99,55	61,9	62,5
K _{α1}	K – L ₃	98,44	103,76	100	100
K _{β1}	K – M ₃	111,30	117,26	22,0	22,2
K _{β2}	K – N _{2,5}	114,5	120,6	12,3	12,5
K _{β3}	K – M ₂	110,41	116,27	11,6	11,7

* Другие линии К-серии слабее приведенных здесь. Энергии и интенсивности взяты из работы [1].

** Относительная интенсивность (100 — максимум).

1.4 ОСНОВНЫЕ ЛИНИИ ГАММА-ИЗЛУЧЕНИЯ ЯДЕРНЫХ МАТЕРИАЛОВ

1.4.1 Типичные спектры

На рис. 1.7–1.12 представлены типичные спектры гамма-излучения урана, плутония и тория. Спектры были получены с помощью спектрометрических систем с германиевыми детекторами высокого разрешения. На рис. 1.7 представлен спектр гамма-излучения высокообогащенного урана в диапазоне от 0 до 3 МэВ с характерными гамма-линиями от ²³⁵U и от ^{234m}Pa, дочернего ядра ²³⁸U. Интенсивные гамма-линии с энергией в диапазоне между 140 и 210 кэВ часто используются для анализа ²³⁵U (на рис. 1.8 этот диапазон представлен более подробно). Для сравнения на рис. 1.9 представлен спектр обедненного урана, в котором проявляется излучение дочерних ядер ²³⁸U, часто используемое для анализа ²³⁸U. На рис. 1.10 и 1.11 представлены спектры гамма-излучения плутония с концентрациями ²⁴⁰Pu 14 и 6 %, соответственно. Обратите внимание на различия в относительной высоте пиков двух спектров, это различие обычно используется для определения изотопного состава плутония (см. главу 8). На рис. 1.12 представлен спектр характерного гамма-излучения ²³²Th; все основные гамма-кванты тория происходят от дочерних ядер.

1.4.2 Основные характеристики гамма-излучения, используемые для анализа ядерных материалов

В принципе любое гамма-излучение ядерного материала можно использовать для определения массы испускающего его изотопа. На практике одни линии гамма-излучения используются более часто, чем другие, вследствие их интенсивности, проникающей способности и отсутствия интерференции соседних линий. Идеальным было бы интенсивное (>10⁴ квант/г·с) гамма-излучение с энергией в несколько мегаэлектронвольт. Массовые коэффициенты ослабления всех материалов имеют широкий минимум между 1 и 5 МэВ, и существует очень мало естественных линий гамма-излучения с энергией выше 1 МэВ, которые могли бы вызвать интерференцию. К сожалению, для урана и плутония таких гамма-квантов нет.

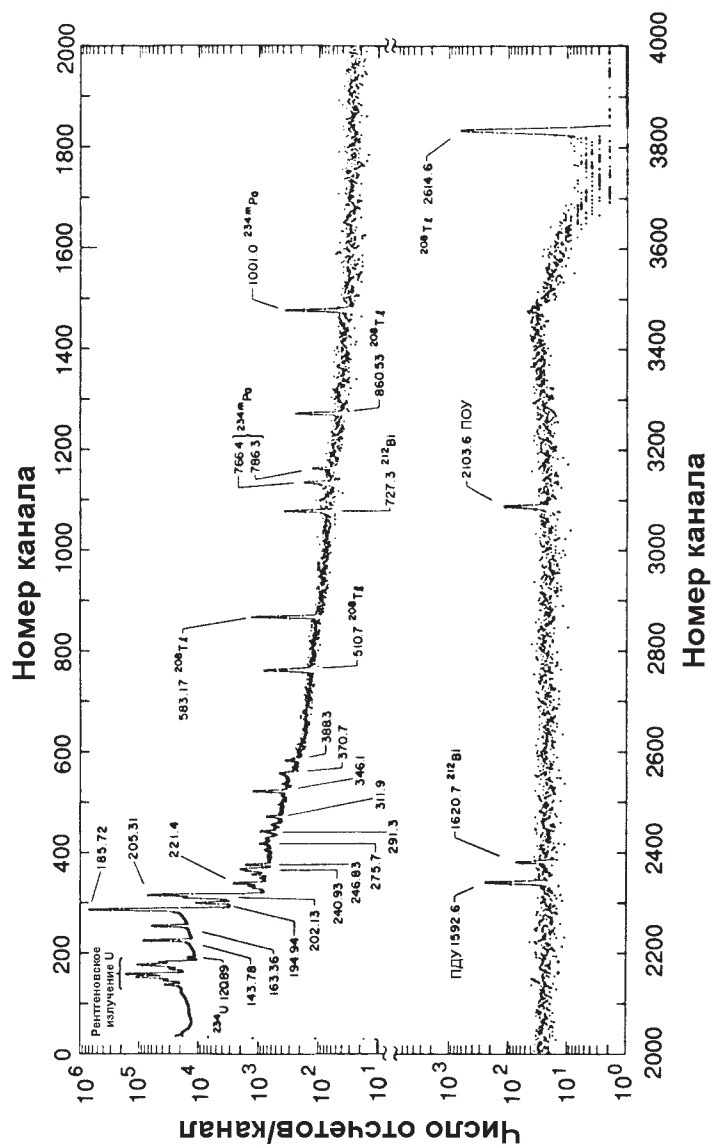


Рис. 1.7. Спектр высокого разрешения гамма-излучения высокообогащенного урана (93 % ²³⁵U). Энергии даны в килоэлектронвольтах (ПОУ и ПДУ — тики одиночной и двойной утечки гамма-квантов для гамма-линии с энергией 2614 кэВ)

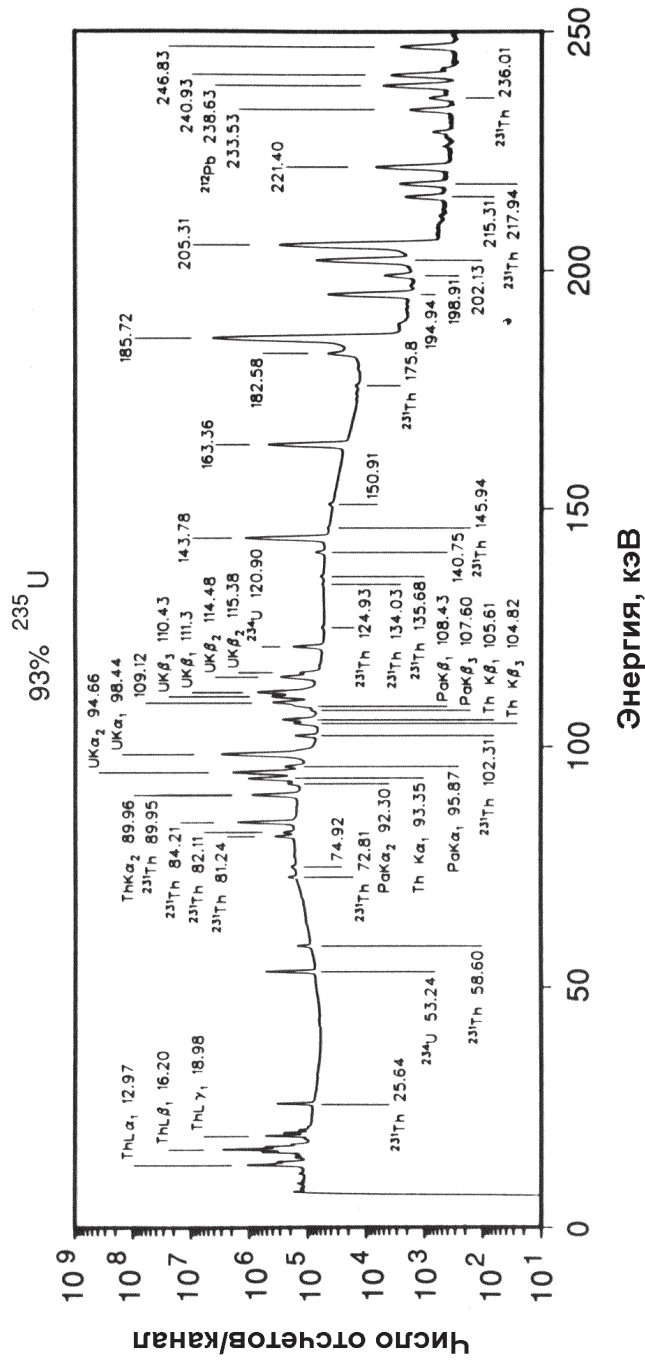


Рис. 1.8. Спектр гамма-излучения высокообогащенного урана, показывающий интенсивные линии гамма-излучения, часто используемые для анализа ^{235}U

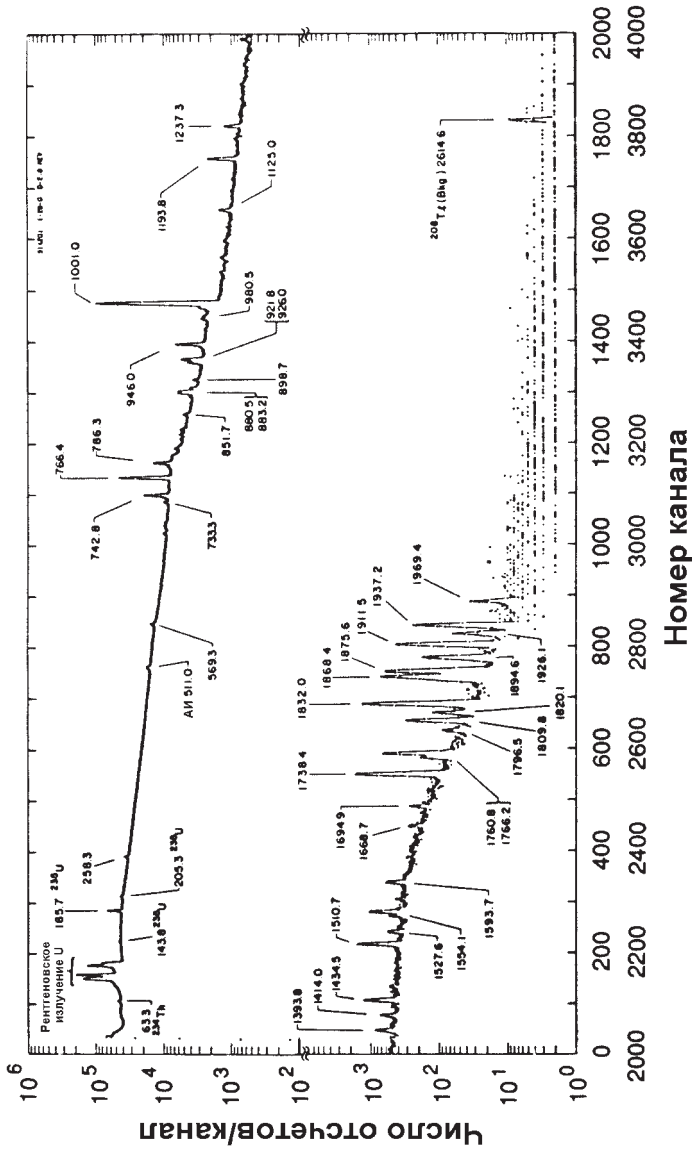


Рис. 1.9. Спектр гамма-излучения обедненного урана (0,2% ²³⁵U). Интенсивные линии гамма-излучения при 766 и 1001 кэВ принадлежат дочернему от ²³⁸U ядру ^{234m}Pa и часто используются для анализа ²³⁸U. Большая часть слабого гамма-излучения с энергией выше 1001 кэВ также исходит от ^{234m}Pa (АИ — аннигиляционное излучение; небольшой пик при 511 кэВ — от аннигиляции позитрона)

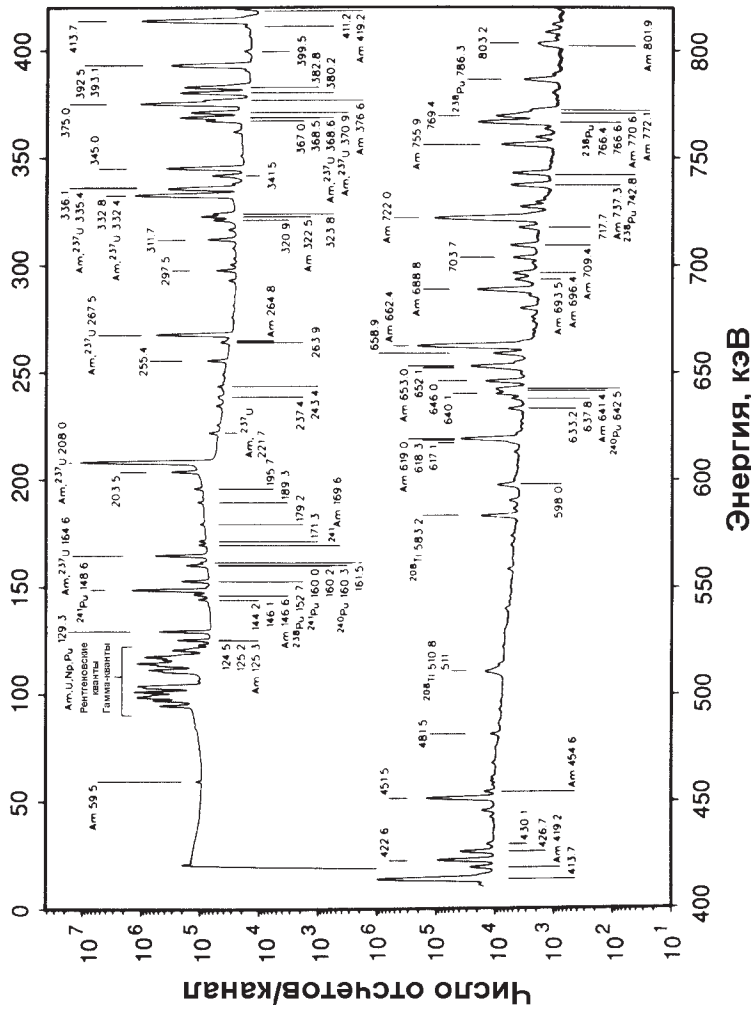


Рис. 1.10. Спектр гамма-излучения плутония с содержанием 14 % ²⁴⁰Pu и 1,2 % ²⁴¹Am. Сравните этот спектр с изображенным на рис. 1.11, обратите внимание на различие в относительных интенсивностях. Сравните интенсивности излучения три 203,5 кэВ (²³⁹Pu) и 208,0 кэВ (²³⁷U, дочерний от ²⁴¹Pu)

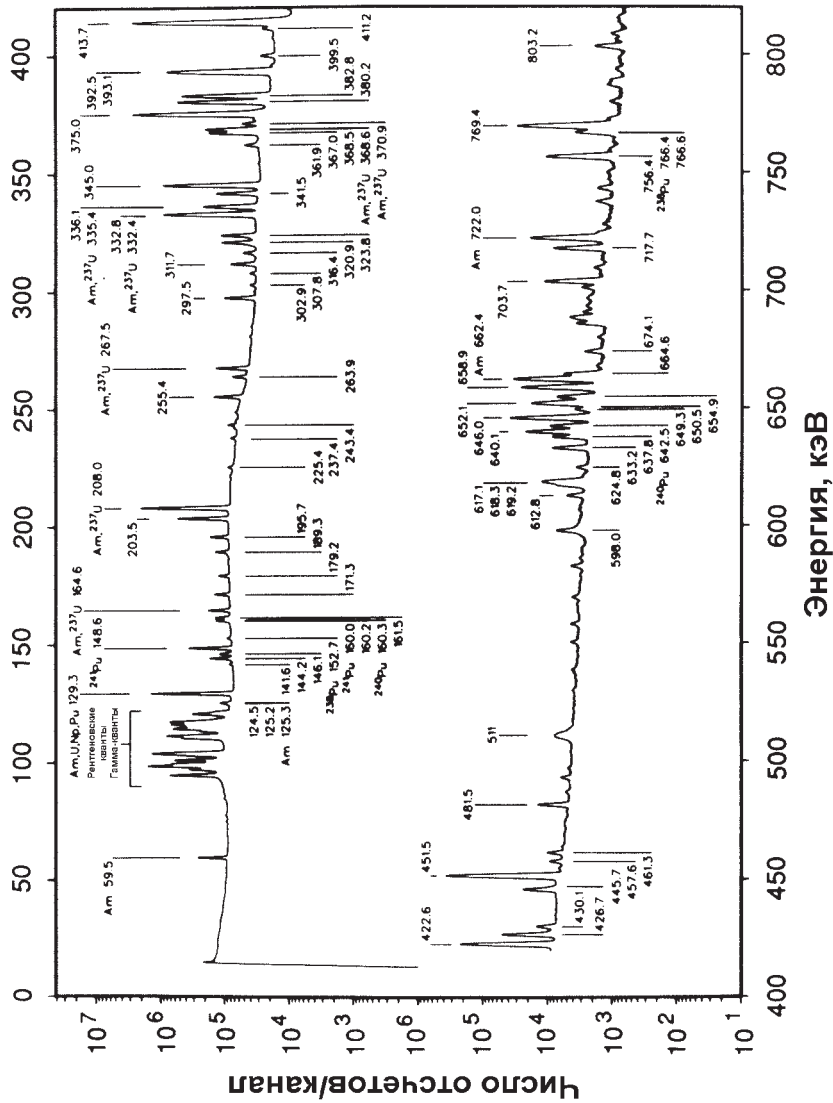


Рис. 1.11. Спектр гамма-излучения плутония низкого выгорания с содержанием ^{240}Pu приблизительно 6 %

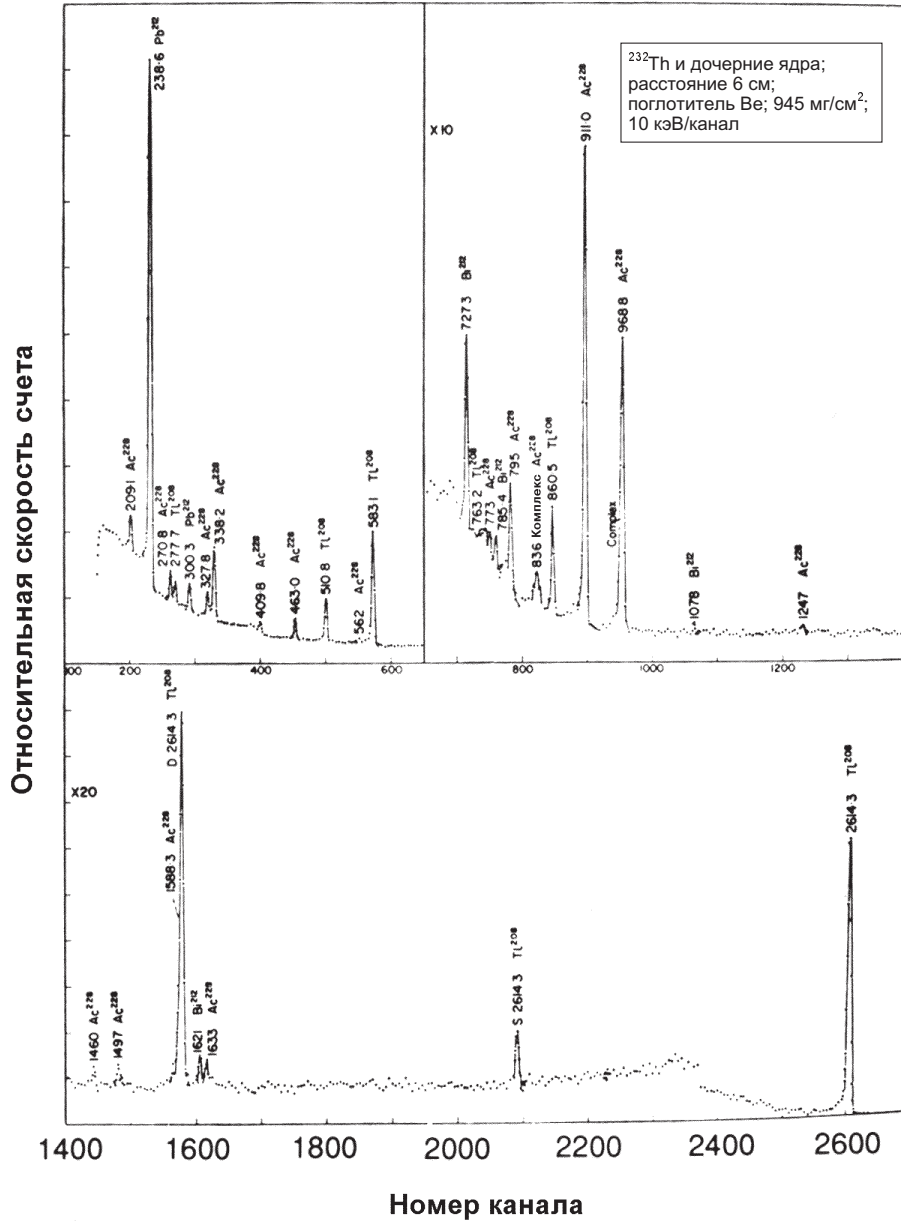


Рис. 1.12. Спектр гамма-излучения ^{232}Th и его дочерних ядер. Сам ^{232}Th не имеет интенсивных линий гамма-излучения. Дочерние ядра приходят в равновесное состояние с ^{232}Th за период около 35 лет [6]

В табл. 1.2 приводятся характеристики гамма-излучения, наиболее часто используемые для неразрушающего анализа основных изотопов урана и плутония.

Таблица 1.2 – Основные характеристики гамма-излучения, используемые при неразрушающем анализе

Изотоп	Энергия*, кэВ	Интенсивность*, γ/г·с	Средняя длина свободного пробега**, мм	
			большие Z, ρ	малые Z, ρ
²³⁴ U	120,9	$9,35 \times 10^4$	0,23	69
²³⁵ U	143,8	$8,40 \times 10^3$	0,36	73
	185,7	$4,32 \times 10^4$	0,69	80
²³⁸ U	766,4***	$2,57 \times 10^1$	10,0	139
	1001,0***	$7,34 \times 10^1$	13,3	159
²³⁸ Pu	152,7	$5,90 \times 10^6$	0,40	75
	766,4	$1,387 \times 10^5$	9,5	139
²³⁹ Pu	129,3	$1,436 \times 10^5$	0,27	71
	413,7	$3,416 \times 10^4$	3,7	106
²⁴⁰ Pu	45,2	$3,80 \times 10^6$	0,07	25
	160,3	$3,37 \times 10^4$	0,45	76
	642,5	$1,044 \times 10^3$	7,4	127
²⁴¹ Pu	148,6	$7,15 \times 10^6$	0,37	74
	208,0****	$2,041 \times 10^7$	0,86	83
²⁴¹ Am	59,5	$4,54 \times 10^{10}$	0,14	38
	125,3	$5,16 \times 10^6$	0,26	70

* Данные по изотопам урана взяты из [1], данные по изотопам плутония: энергия и интенсивность ветвления — из [2], период полураспада — из [3].

** Средняя длина свободного пробега — это толщина поглотителя, снижающая интенсивность гамма-излучения в "е" раз. Средняя длина свободного пробега в оксиде урана или плутония ($\rho=10$ г/см³) дана в графе высокоплотных материалов с высоким атомным номером (большие Z, ρ). Средняя длина свободного пробега в оксиде алюминия ($\rho=1$ г/см³) дана в графе материалов с низкой плотностью, малым атомным номером (малые Z, ρ). Данные по поглощению взяты из [4].

*** Из дочернего ядра ^{234m}Pa в равновесии с материнским ²³⁸U.

**** Из дочернего ядра ²³⁷U в равновесии с материнским ²⁴¹Pu.

1.4.3 Гамма-излучение продуктов деления

Значительный интерес представляет измерение характеристик облученного топлива ядерных реакторов. Облученное топливо имеет большую денежную стоимость и обращение с ним требует гарантии нераспространения, т.к. в процессе эксплуатации ядерных реакторов получают плутоний. Для измерения и анализа облученного топлива нельзя использовать гамма-излучение от естественного распада урана и плутония, так как оно подавляется очень интенсивным гамма-излучением продуктов деления, образующихся в топливе в процессе облучения. Полная интенсивность гамма-излучения продуктов деления топлива из легководного реактора, облученного до уровня 33 000 МВт-сут/т U (мегаватт-сутки на тонну урана), составляет примерно 2×10^{10} квант/г·с (г — грамм урана) через год после удаления топлива из реактора, в то время как основное гамма-излучение урана и плутония обладает интенсивностью в диапазоне от 10^3 до 10^4 квант/г·с. В некоторых случаях интенсивность гамма-излучения одного или более продуктов деления можно измерить и соотнести с массой содержащегося ядерного материала.

Тяжелые ядра с высоким атомным номером Z могут делиться на два или три дочерних ядра с меньшим Z . Процесс деления может происходить спонтанно или может быть вызван поглощением нейтрона тяжелым ядром. Спонтанное деление более вероятно в ядрах с четным массовым числом A . Деление под действием нейтронов (вынужденное деление) возможно после поглощения либо тепловых, либо быстрых нейтронов ядрами с нечетными массовыми числами; оно возможно также после поглощения быстрых нейтронов ядрами с четным A . Процесс деления впервые был открыт в 1939 г. Отто Ганом и Фридрихом Штрассманом и объяснен теоретически в этом же году Лизой Мейтнер и Отто Фришем.

Деление ядра по сравнению с процессами альфа- и бета-распадов, описанными в разделах 1.2.2 и 1.2.3, представляет собой микровзрыв. Высвобождающаяся при делении энергия составляет около 200 МэВ. Большая часть этой энергии переходит в кинетическую энергию двух (реже трех) дочерних ядер, называемых продуктами деления или осколками деления. Делящиеся ядра, кроме того, испускают в среднем два быстрых нейтрона и шесть гамма-квантов сразу после расщепления. Типичная схема реакции деления представлена ниже:



Эта схема иллюстрирует только одну из множества возможных реакций деления ядра. Продукты деления сами являются нестабильными. Они содержат избыток нейтронов и распадаются с испусканием нейтрона или β^- -частицы (часто одновременно с гамма-излучением); излучения продуктов деления называются запаздывающими нейтронами и гамма-квантами. Период полураспада продуктов деления составляет от нескольких секунд до нескольких лет. Гамма-кванты продуктов деления можно использовать для анализа облученных топливных материалов.

Типичные спектры облученного топлива даны на рис. 1.13 и 1.14. На рис. 1.13 представлен спектр высокообогащенного урана — топлива, используемого в материаловедческих реакторах. На рис. 1.14 представлен спектр облученного топлива для легководного реактора. Наиболее часто измеряют гамма-излучение продукта деления ${}^{137}\text{Cs}$ с энергией 661,6 кэВ. Этот продукт деления имеет большой выход и большой период полураспада (30,2 года), так что его концентрация пропорциональна полному числу делений, произошедших в топливе (см. главу 18 с более подробным описанием реакции деления и измерения облученного топлива).

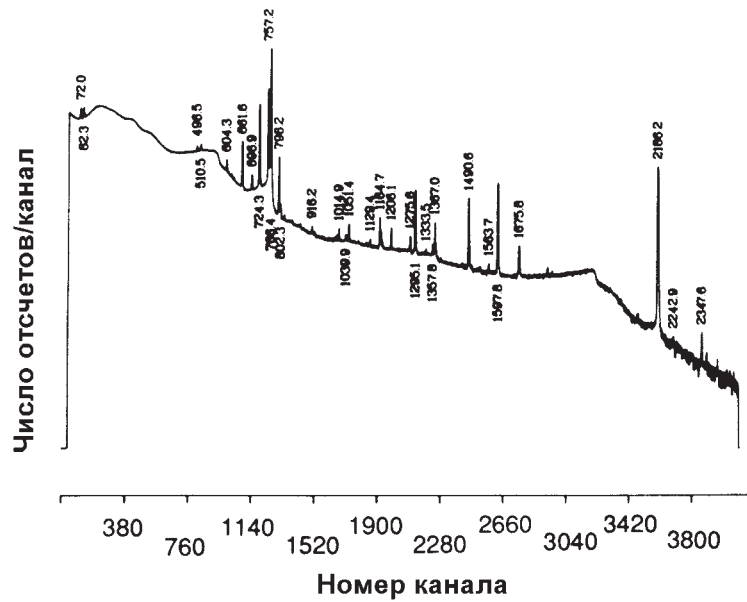


Рис. 1.13. Гамма-спектр высокообогащенного уранового топлива, облученного в материало-ведческом реакторе. Образец имеет среднее выгорание, равное 36,9 % и время выдержки 1,59 года

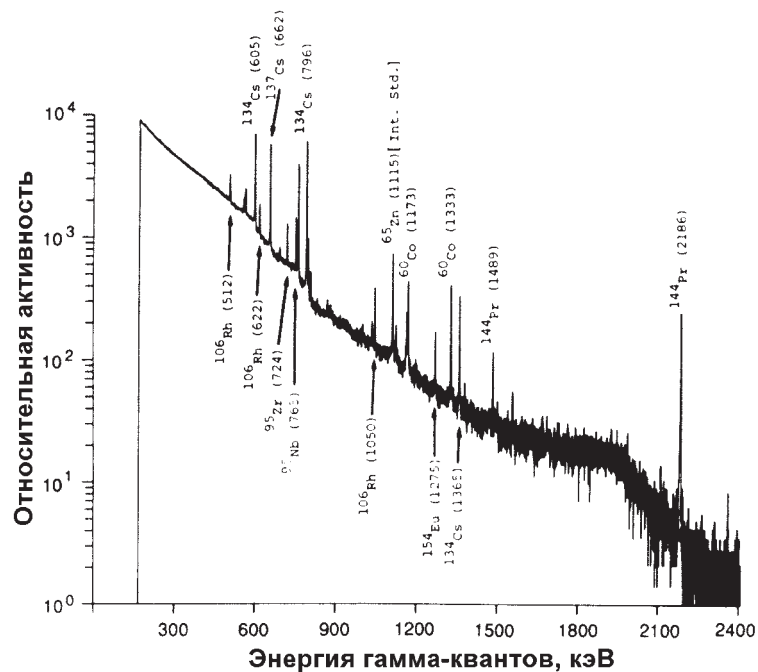


Рис. 1.14. Спектр гамма-излучения облученного топлива реактора с водой под давлением, имеющего выгорание 32000 МВт-сут/т U (мегаватт-сутки на тонну урана) и время выдержки 9 месяцев

1.4.4 Радиационный фон

Все детекторы гамма-излучения покажут какой-то результат измерения даже в отсутствие контролируемого образца. Этот результат — следствие измерения фона вблизи детектора. Фон обусловлен излучением ядерных материалов, расположенных в близлежащих зонах хранения, космическим излучением и естественной радиоактивностью окружающей среды.

Излучение от хранящихся поблизости ядерных материалов имеет то же происхождение, что и излучение от контролируемых образцов. Фоновый спектр аналогичен спектрам, показанным на рис. 1.7–1.12. Значительную долю этого спектра часто составляет непрерывное комптоновское распределение, образующееся в результате рассеяния в материалах, разделяющих детектор и зону хранения. Фоновое излучение ядерных материалов может быть снижено правильным размещением детектора и его экранированием.

На поверхности земли космические лучи состоят прежде всего из высокоэнергетических гамма-квантов и заряженных частиц. Хотя нейтронная компонента и существует, она оказывает небольшое влияние на детекторы гамма-излучения. Заряженные частицы — это в основном мюоны, но включают также электроны и протоны. Мюонный поток на уровне моря составляет примерно $0,038 \text{ 1/см}^2\cdot\text{с}$; на высоте 2000 м мюонный поток увеличивается примерно до $0,055 \text{ 1/см}^2\cdot\text{с}$. Мюон взаимодействует с веществом как тяжелый электрон и скорость потери энергии у него при прохождении через типичные твердые или жидкие материалы детектора составляет примерно $8,6 \text{ МэВ/см}$. Обычно проникающий мюон оставляет энергию примерно 34 МэВ в детекторе толщиной 40 мм. Из-за того, что эта энергия значительно превышает энергию, теряемую в детекторе гамма-квантами урана или плутония, мюонные взаимодействия часто приводят к перегрузкам или насыщению регистрирующей электроники. Для детектора с площадью поверхности 20 см^2 типичная скорость мюонных взаимодействий на уровне моря составляет $0,75$ частиц/с.

Все материалы обладают естественной радиоактивностью в различной степени. Например: тело человека и даже материалы детекторов имеют заметную естественную радиоактивность; особенно радиоактивны строительные материалы, такие как бетон. Основными радиоактивными элементами в природных материалах являются ^{40}K , ^{232}Th и их дочерние элементы, а также ^{235}U и ^{238}U и их дочерние элементы. Калий-40 по распространенности составляет $0,0117 \%$ и распадается путем электронного захвата ($10,67 \%$) и β -распада ($89,33 \%$) с периодом полураспада $1,277 \times 10^9$ года. Электронный захват сопровождается испусканием гамма-кванта с энергией $1,461 \text{ МэВ}$, который регистрируется во всех фоновых гамма-спектрах. Калий присутствует в большинстве органических веществ, а ^{40}K является основным источником радиоактивности.

Следы тория присутствуют в большинстве земных пород. ^{232}Th является природным материнским ядром радиоактивного семейства тория, заканчивающегося стабильным изотопом ^{208}Pb . Период полураспада ^{232}Th составляет $1,41 \times 10^{10}$ года. Его основное гамма-излучение обусловлено ^{208}Tl , ^{212}Bi и ^{228}Ac .

Следы урана также находят в большинстве пород, хотя он менее распространен, чем торий. Гамма-спектр необработанной урановой руды сильно отличается от спектра гамма-излучения урана, используемого в качестве ядерного топлива. Из-за большого периода полураспада дочернего ^{230}Th (8×10^4 лет), этот изотоп и

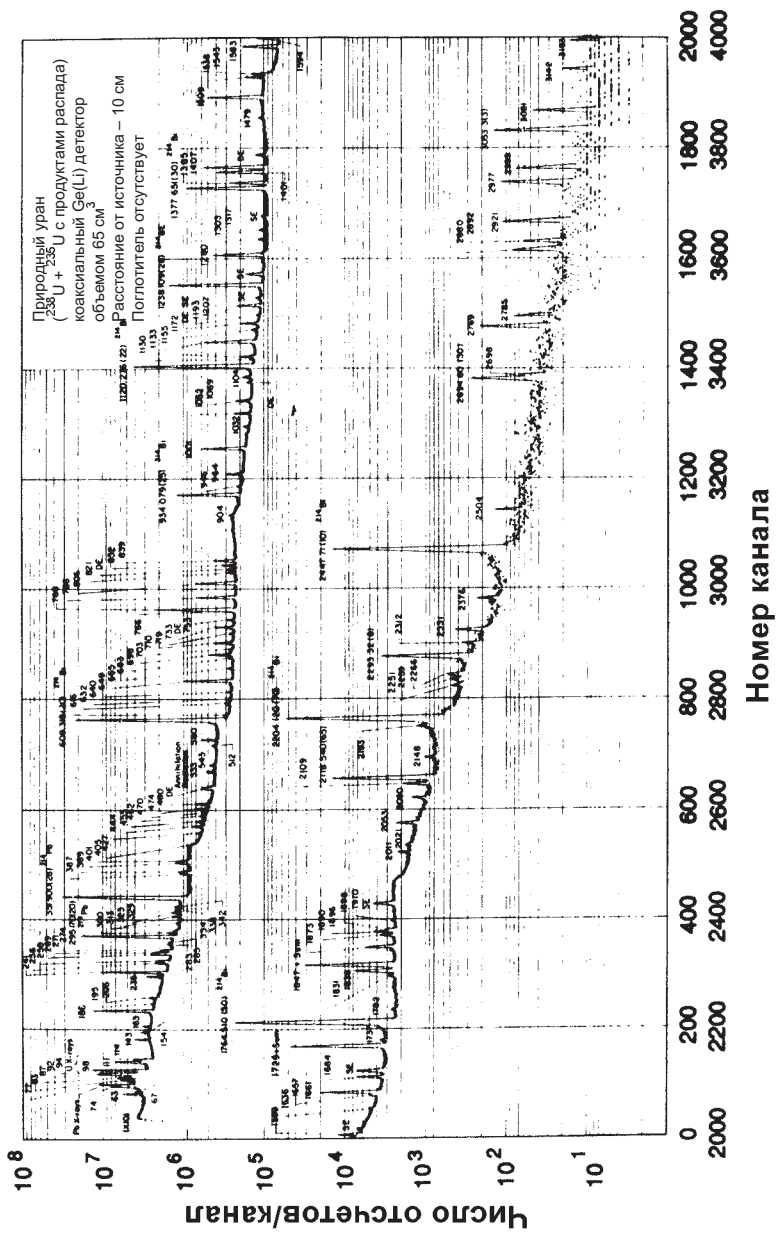


Рис. 1.15. Спектр гамма-излучения урановой руды. Основное излучение — от ^{214}Pb и ^{214}Bi . Сравните со спектром переработанного уранового топлива на рис. 1.9; большинство дочерних продуктов удаляется при переработке [7]

продукты его распада отсутствуют в топливе после химического разделения их от природного урана, поскольку им необходимо длительное время для возврата к состоянию равновесия. На рис. 1.15 представлен типичный спектр урановой руды (сравните с рис. 1.9). Естественные химические процессы в различных породах часто приводят к выщелачиванию некоторых дочерних нуклидов, что влияет на спектр гамма-излучения различных руд.

Рассмотренные выше природные источники широко распространены и вносят вклад в фоновый гамма-спектр в большинстве мест измерения. Другими изредка встречающимися источниками фона являются материалы, загрязненные радиоактивными элементами. В некоторых случаях в качестве составляющих бетона используется шлак доменной печи, имеющий заметный уровень радиоактивного загрязнения ^{60}Co , и отходы урановой руды. Использование таких материалов при строительстве объектов может способствовать увеличению радиационного фона.

1.5 ДОПОЛНИТЕЛЬНЫЕ РЕАКЦИИ ОБРАЗОВАНИЯ ГАММА-ИЗЛУЧЕНИЯ

В разделе 1.4 обсуждались характеристики гамма-излучения только от естественного распада радиоактивных изотопов. Такое гамма-излучение содержит значительное число характерных гамма-линий, полезных для неразрушающего анализа. В этой главе рассматривается гамма-излучение, образуемое в других ядерных реакциях. Некоторые из этих излучений могут оказаться помехой при неразрушающем анализе.

1.5.1 Тормозное излучение

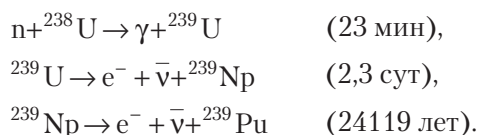
Заряженные частицы непрерывно замедляются, проходя через плотные вещества. При торможении они испускают фотоны с непрерывным энергетическим спектром, называемые тормозным излучением; эти фотоны представляют интерес, так как их энергии часто близки к энергиям гамма-квантов, используемым при неразрушающем анализе.

Бета-частицы ядерного распада при торможении часто испускают фотоны тормозного излучения. Хотя бета-частицы имеют очень короткий пробег в плотном веществе и редко покидают границы материала, фотоны тормозного излучения часто вылетают за границы вещества и регистрируются одновременно с гамма-излучением, используемым при неразрушающем анализе. Электроны внутренней конверсии также могут вносить вклад в тормозное излучение. Дискретные гамма-кванты, испускаемые распадающимися ядрами, могут накладываться на непрерывный спектр тормозного излучения. Линейные ускорители электронов используют реакции торможения с целью получения высокоэнергетических фотонов для ядерных исследований, ядерной медицины, активного неразрушающего анализа материалов [5].

1.5.2 Реакции взаимодействия с частицами

При взаимодействии ядер с другими частицами, заряженными или нейтральными, часто испускаются гамма-кванты. Классическим примером такой реакции является реакция захвата нейтрона (n, γ). Обычно новые ядра радиоактивны или образуются в возбужденном состоянии, после чего может происходить распад с

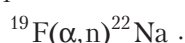
испусканием гамма-излучения. Представленные ниже схемы иллюстрируют процесс захвата нейтрона, приводящий к образованию плутония в реакторах:



Гамма-кванты в реакциях захвата имеют дискретные значения энергии, являющиеся характеристиками энергетических уровней дочерних ядер. Для ядер с высоким атомным номером их энергии обычно составляют от 8 до 9 МэВ.

Неупругое рассеяние нейтронов ($n, n'\gamma$) также сопровождается испусканием гамма-излучения, которое характеризует энергетические уровни ядер мишени и как правило не представляет интереса для неразрушающего анализа.

Основным источником нейтронов из плутониевых соединений и UF_6 является взаимодействие альфа-частиц, образующихся в результате распада тяжелых ядер, с ядрами легких элементов, присутствующими в составе соединений или в материалах окружающей матрицы. Реакции типа (α, n) часто сопровождаются испусканием гамма-квантов возбужденных ядер продуктов реакции. Реакцию на фторе можно записать следующим образом:



Такая реакция на фторе обычно приводит к образованию ${}^{22}\text{Na}$ в основном состоянии без испускания гамма-излучения. Однако последующий β^+ - (позитронный) распад ${}^{22}\text{Na}$ приводит к испусканию гамма-квантов с энергиями 511 и 1275 кэВ. Эти гамма-линии проявляются в спектрах от образцов PuF_4 и ${}^{238}\text{PuO}_2$ со следами примесей фтора. Они не используются для неразрушающего анализа, но могут быть источником помех.

ЛИТЕРАТУРА

1. C.M. Lederer and V.S. Shirley, Eds., *Tables of Isotopes*, 7th ed. (John Wiley & Sons, Inc., New York, 1978).
2. R. Gunnink, J.E. Evans, and A.L. Prindle, "A Reevaluation of the Gamma-Ray Energies and Absolute Branching Intensities of ${}^{237}\text{U}$, ${}^{238,239,240,241}\text{Pu}$, and ${}^{241}\text{Am}$," Lawrence Livermore Laboratory report UCRL-52139 (1976).
3. "Calibration Techniques for the Calorimetric Assay of Plutonium-Bearing Solids Applied to Nuclear Materials Control," ANSI N15.22-1975 (American National Standards Institute, Inc., New York, 1975) and 1986 revision.
4. J.H. Hubbell, "Photon Cross Sections, Attenuation Coefficients, and Energy Absorption Coefficients from 10 keV to 100 GeV," National Bureau of Standards report NSRDS-NBS-29 (August 1969).
5. T. Gozani, *Active Nondestructive Assay of Nuclear Material, Principles and Applications*, NUREG/CR-0602 (US Nuclear Regulatory Commission, Washington, DC, 1981).
6. F. Adams and R. Dams, "Applied Gamma-Ray Spectroscopy", 3rd ed. (Pergamon Press, Oxford, 1970)
7. R.L. Heath, "Gamma-Ray Spectrum Catalogue," Aerojet Nuclear Corporation report ANCR-1000-2 (March 1974)

Глава 2

Взаимодействие гамма-излучения с веществом

*Г. Нельсон и Д. Райлли
(Переводчик Н. В. Мошкина)*

2.1 ВВЕДЕНИЕ

Знание природы взаимодействия гамма-излучения с веществом важно для аналитика, использующего в своей работе неразрушающие методы, для понимания процессов регистрации и ослабления гамма-излучения. Чтобы быть "увиденным", гамма-излучение должно провзаимодействовать с детектором. Хотя основные изотопы урана и плутония испускают гамма-кванты с определенными энергиями и интенсивностями, интенсивность гамма-излучения, измеренная за пределами образца, всегда ослаблена вследствие взаимодействия гамма-квантов с образцом. Это ослабление должно тщательно учитываться при использовании приборов неразрушающего анализа (НРА) по гамма-излучению.

В этой главе кратко рассматривается экспоненциальное ослабление гамма-излучения в материалах в балк-форме и описываются основные виды взаимодействий гамма-излучения с веществом, защита от гамма-излучения, фильтрация и коллимация гамма-излучения. Более подробно об этом можно узнать из работ [1] и [2].

2.2 ЭКСПОНЕНЦИАЛЬНОЕ ОСЛАБЛЕНИЕ

Гамма-кванты впервые были открыты в 1900 г. Беккерелем и Уиллардом как часть излучения урана и радия, обладающая гораздо большей проникающей способностью, чем альфа- и бета-частицы. В 1909 г. Содди и Рассел обнаружили, что ослабление гамма-излучения подчиняется экспоненциальному закону и, что отношение коэффициента ослабления к плотности ослабляющего материала приблизительно постоянно для всех материалов.

2.2.1 Основной закон ослабления гамма-излучения

На рис. 2.1 представлена простая схема эксперимента по ослаблению. Когда гамма-излучение с интенсивностью I_0 падает на поглотитель толщины L , интенсивность I излучения, прошедшего через поглотитель, описывается экспоненциальным выражением:

$$I = I_0 e^{-\mu_c L}, \quad (2.1)$$

где μ_c — коэффициент ослабления, выраженный в см^{-1} .

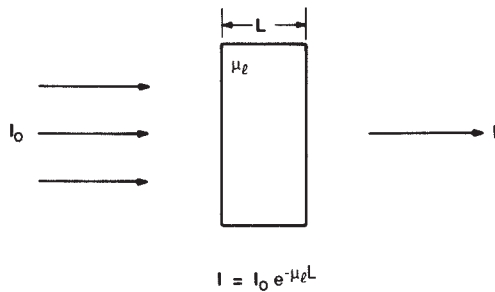


Рис. 2.1. Основной закон ослабления гамма-излучения. Интенсивность прошедшего излучения I является функцией энергии гамма-излучения, состава и толщины поглотителя

Отношение I/I_0 называется коэффициентом пропускания гамма-излучения. На рис. 2.2 показано экспоненциальное ослабление для трех различных энергий гамма-излучений. Из рисунка видно, что коэффициент пропускания возрастает с увеличением энергии гамма-излучения и снижается с увеличением толщины поглотителя. Измерения с использованием различных источников и поглотителей показали, что коэффициент ослабления μ_L зависит от энергии гамма-излучения, атомного номера Z и плотности ρ поглотителя. Например, свинец обладает высокой плотностью и большим атомным номером и пропускает гораздо меньшую долю падающего гамма-излучения, чем алюминий или сталь такой же толщины. Коэффициент ослабления в уравнении (2.1) называется линейным коэффициентом ослабления. На рис. 2.3 показано линейное ослабление твердого йодида натрия, типичного материала, широко используемого в детекторах гамма-излучения.

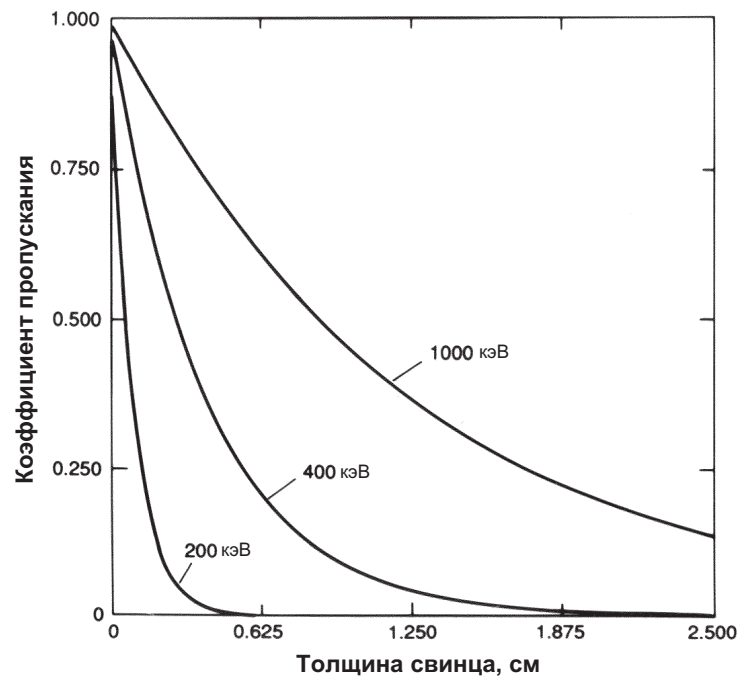


Рис. 2.2. Зависимость коэффициента пропускания гамма-квантов от толщины свинцового поглотителя

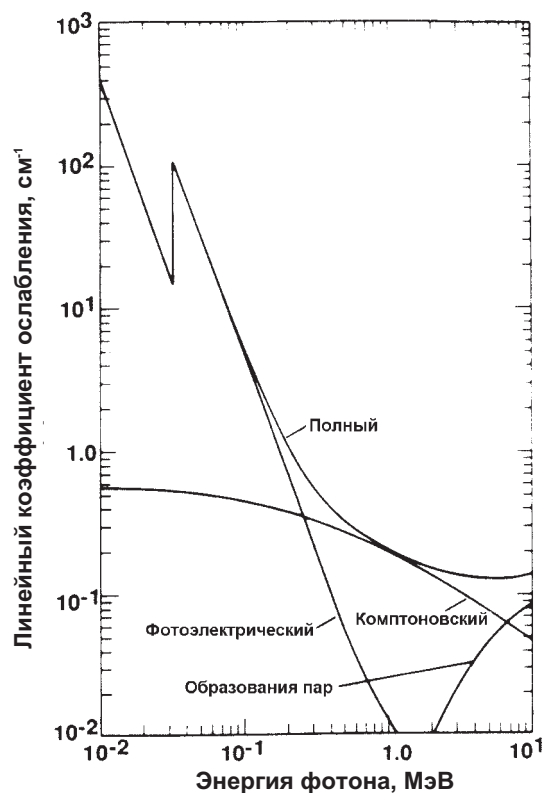


Рис. 2.3. График линейного коэффициента ослабления NaI, показывающий вклад процессов фотоэлектрического поглощения, комптоновского рассеяния и образования пар

Альфа- и бета-частицы имеют хорошо определенную длину пробега или тормозной путь. Гамма-кванты, как показано на рис. 2.2, не имеют определенной длины пробега. Величина обратная коэффициенту ослабления $1/\mu_c$ имеет единицу измерения длины и часто называется средней длиной свободного пробега. Средняя длина свободного пробега представляет собой расстояние, которое проходит гамма-квант в поглотителе до взаимодействия, она также равна толщине поглотителя, при которой коэффициент пропускания равен $1/e$ или 0,37.

2.2.2 Массовый коэффициент ослабления

Линейный коэффициент ослабления представляет собой простейший коэффициент ослабления, который можно измерить экспериментально, но он обычно не приводится в справочных таблицах ввиду зависимости от плотности поглощающего материала. Например, вода, лед и пар имеют различные линейные коэффициенты ослабления для одной и той же энергии, хотя они состоят из одного и того же вещества.

Гамма-кванты взаимодействуют, в основном, с атомными электронами, следовательно, коэффициент ослабления должен быть пропорционален плотности электронов P , которая пропорциональна объемной плотности поглощающего материала. Тем не менее, для данного вещества отношение плотности электронов к

объемной плотности вещества является константой Z/A , независимой от объемной плотности. Отношение Z/A является почти постоянным для всех элементов, кроме самых тяжелых элементов и водорода:

$$P = Z\rho / A, \quad (2.2)$$

где P — плотность электронов;

Z — атомный номер;

ρ — массовая плотность;

A — массовое число.

Отношение линейного коэффициента ослабления к плотности μ_c/ρ называется массовым коэффициентом ослабления μ и имеет размерность площади на единицу массы ($\text{см}^2/\text{г}$). Судя по единице измерения этого коэффициента, можно рассматривать его как эффективное сечение взаимодействия электронов на единицу массы поглотителя. Массовый коэффициент ослабления может быть записан через сечение реакции σ (см^2):

$$\mu = \frac{N_0\sigma}{A}, \quad (2.3)$$

где N_0 — число Авогадро ($6,02 \times 10^{23}$);

A — массовое число поглощающего элемента.

Сечение взаимодействия представляет собой вероятность взаимодействия гамма-квантов с отдельным атомом. В главе 12 дано более полное определение понятия сечения взаимодействия. Используя массовый коэффициент ослабления, уравнение (2.1) можно представить следующим образом:

$$I = I_0 e^{-\mu\rho L} = I_0 e^{-\mu x}, \quad (2.4)$$

где $x = \rho L$.

Массовый коэффициент ослабления не зависит от плотности; например, как было упомянуто выше, вода, лед и пар имеют одно и то же значение μ . Этот коэффициент чаще приводится в таблицах, чем линейный коэффициент ослабления, поскольку он количественно определяет вероятность взаимодействия гамма-квантов с конкретным элементом. В работах [3] и [4] содержатся широко используемые таблицы массовых коэффициентов ослабления элементов. Для вычисления массового коэффициента ослабления в материалах со сложным химическим составом используется уравнение (2.5):

$$\mu = \sum \mu_i w_i, \quad (2.5)$$

где μ_i — массовый коэффициент ослабления i -го элемента,

w_i — массовая доля i -го элемента.

Использование уравнения (2.5) можно проиллюстрировать на примере взаимодействия гамма-излучения с энергией 200 кэВ с твердым гексафторидом урана UF_6 :

μ_U — массовый коэффициент ослабления U для 200 кэВ = $1,23 \text{ см}^2/\text{г}$;

μ_F — массовый коэффициент ослабления F для 200 кэВ = $0,123 \text{ см}^2/\text{г}$;

w_U — массовая доля U в UF_6 = $0,68$;

w_F — массовая доля F в UF_6 = $0,32$;

ρ — плотность твердого UF_6 = $5,1 \text{ г}/\text{см}^3$;

$\mu = \mu_U w_U + \mu_F w_F = 1,23 \times 0,68 + 0,123 \times 0,32 = 0,88 \text{ см}^2/\text{г}$;

$\mu_c = \mu\rho = 0,88 \times 5,1 = 4,5 \text{ см}^{-1}$.

2.3 ПРОЦЕССЫ ВЗАИМОДЕЙСТВИЯ

Представляющее интерес для задач неразрушающего анализа гамма-излучение находится в энергетическом диапазоне от 10 до 2000 кэВ и взаимодействует с детекторами и поглотителями посредством трех основных процессов: фотоэлектрическое поглощение, комптоновское рассеяние и образование пар. В процессе фотоэлектрического поглощения гамма-квант теряет всю свою энергию в одном взаимодействии. Вероятность этого процесса очень сильно зависит от энергии гамма-кванта E_γ и атомного номера Z . При комптоновском рассеянии гамма-квант теряет в одном взаимодействии только часть своей энергии. Вероятность этого процесса слабо зависит от E_γ и Z . Гамма-квант может потерять всю свою энергию в процессе взаимодействия с образованием пары электрон-позитрон. Однако этот процесс не является существенно значимым для анализа делящихся материалов, поскольку его порог превышает 1 МэВ. Более подробное физическое описание процессов взаимодействия можно найти в работе [3].

2.3.1 Фотоэлектрическое поглощение

Гамма-квант может взаимодействовать со связанным электроном атома таким образом, что он теряет всю свою энергию и перестает существовать как гамма-квант (см. рис. 2.4). Некоторая часть энергии гамма-кванта используется на преодоление энергии связи электрона, а большая часть оставшейся энергии передается высвобожденному электрону в качестве кинетической энергии. Очень малая часть энергии отдачи остается в атоме для сохранения импульса. Этот процесс называется фотоэлектрическим поглощением, поскольку представляет собой аналог процесса, открытого Герцем в 1887 г., посредством которого фотоны видимого света освобождают электроны с поверхности металла. Фотоэлектрическое поглощение является важным процессом для регистрации гамма-излучения, потому что гамма-квант отдает всю свою энергию, и результирующий импульс попадает в пик полного поглощения.

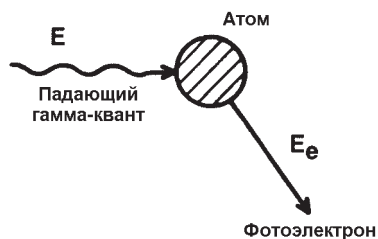


Рис. 2.4. Схема процесса фотоэлектрического поглощения

Вероятность фотоэлектрического поглощения зависит от энергии гамма-кванта, энергии связи электрона и атомного номера атома. Эта вероятность тем больше, чем больше связь электрона с атомом. Следовательно, больше всего фотоэффекту подвержены К-электроны (свыше 80 % взаимодействий происходит с участием электронов К-оболочки) при условии, что энергия гамма-кванта превышает энергию связи К-электрона. Приближенное значение вероятности дается уравнением (2.6), которое показывает, что фотоэлектрическое взаимодейст-

вие более значимо для тяжелых атомов типа свинца и урана и гамма-квантов низких энергий:

$$\tau \propto Z^4 / E^3, \quad (2.6)$$

где τ — фотоэлектрический массовый коэффициент ослабления.

Эта пропорциональность является лишь приблизительной, поскольку показатель степени Z изменяется в диапазоне от 4,0 до 4,8. С уменьшением энергии гамма-кванта вероятность фотоэлектрического поглощения быстро растет (см. рис. 2.5). Фотоэлектрическое поглощение является преобладающим процессом взаимодействия для гамма-квантов низких энергий, рентгеновских квантов и тормозного излучения.

Энергия фотоэлектрона E_e , освобождаемого в процессе взаимодействия, представляет собой разность между энергией гамма-кванта E_γ и энергией связи электрона E_b :

$$E_e = E_\gamma - E_b. \quad (2.7)$$

В большинстве детекторов фотоэлектрон быстро останавливается в активном объеме детектора, который выдает небольшой выходной импульс с амплитудой, пропорциональной энергии, потерянной фотоэлектроном. Энергия связи электрона не теряется, а проявляется в виде характеристического рентгеновского излучения, испускаемого одновременно с фотоэлектроном. В большинстве случаев эти рентгеновские кванты поглощаются в детекторе одновременно с фотоэлектроном, и результирующий выходной импульс пропорционален полной энергии падающего гамма-кванта. При регистрации гамма-квантов низких энергий небольшими детекторами значительное число рентгеновских квантов К-серии могут покинуть детектор, что обуславливает наличие пиков утечки в наблюдаемом

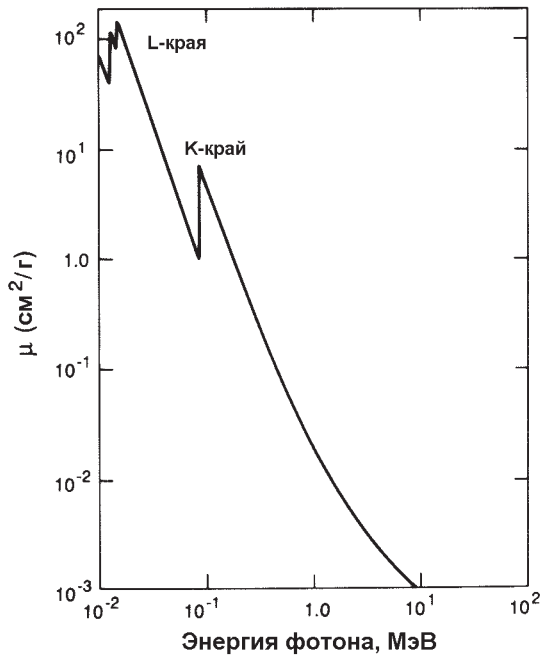


Рис. 2.5. Фотоэлектрический массовый коэффициент ослабления для свинца

спектре. Энергия пиков утечки меньше энергии пика полного поглощения на величину, равную энергии рентгеновского кванта.

На рис. 2.5 представлен фотоэлектрический массовый коэффициент ослабления для свинца. Вероятность взаимодействия быстро возрастает с уменьшением энергии, но затем резко снижается при энергии гамма-кванта чуть ниже энергии связи К-электрона. Этот скачок называется К-краем. Ниже этой энергии гамма-квант не имеет достаточно энергии, чтобы выбить К-электрон. Ниже К-края вероятность взаимодействия снова возрастает до тех пор, пока энергия становится ниже энергий связи L-электронов. Такие скачки называются L_I-, L_{II}- и L_{III}-краями. Наличие этих краев поглощения играет важную роль для измерений методами плотнометрии и рентгеновской флуоресценции (см. главы 9 и 10).

2.3.2 Комптоновское рассеяние

Комптоновское рассеяние представляет собой процесс упругого столкновения, в котором гамма-квант взаимодействует со свободным или слабо связанным электроном ($E_\gamma \gg E_b$) и передает часть своей энергии электрону (см. рис. 2.6). В соответствии с законами сохранения энергии и импульса слабо связанный с атомом электрон может получить только часть энергии гамма-кванта, и гамма-квант не исчезает в комптоновском взаимодействии, в котором участвуют внешние, наименее связанные электроны рассеивающего атома. Электрон становится свободным электроном с кинетической энергией, равной разности энергии, потерянной гамма-квантом, и энергии связи электрона. Поскольку энергия связи электрона очень мала по сравнению с энергией гамма-кванта, кинетическая энергия электрона очень близка к энергии, потерянной гамма-квантом:

$$E_e = E_\gamma - E', \quad (2.8)$$

где E_e — энергия рассеянного электрона;

E_γ — энергия падающего гамма-кванта;

E' — энергия рассеянного гамма-кванта.

Место взаимодействия покидают две частицы: освобожденный электрон и рассеянный гамма-квант. Направления вылета электрона и рассеянного гамма-кванта зависят от количества энергии, переданной электрону во время взаимодействия. Уравнение (2.9) дает выражение для энергии рассеянного гамма-кванта, а на рис. 2.7 показана зависимость энергии рассеянного электрона от угла рассеяния и энергии падающего гамма-кванта.

$$E' = m_0c^2 / (1 - \cos\phi + m_0c^2 / E), \quad (2.9)$$

где m_0c^2 — энергия покоя электрона = 511 кэВ;

ϕ — угол между падающим и рассеянным гамма-квантами (см. рис. 2.6).

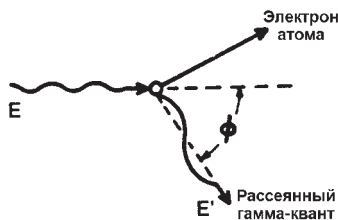


Рис. 2.6. Схема комптоновского рассеяния

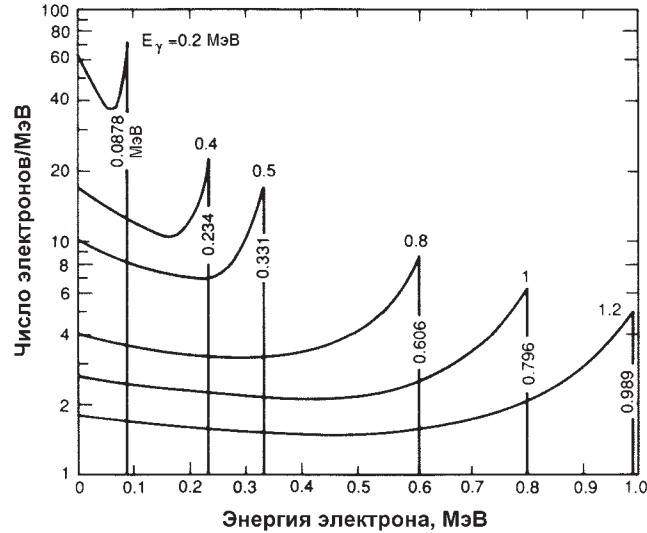


Рис. 2.7. Зависимость энергии электронов комптоновского рассеяния от угла рассеяния и энергии E_γ падающего гамма-кванта. Резкий скачок соответствует максимальной энергии, которая может быть передана при однократном рассеянии

Эта энергия является минимальной для лобового столкновения, при котором гамма-квант рассеивается на 180° , а электрон движется вперед в направлении падающего гамма-кванта. Для этого случая энергия рассеянного гамма-кванта определяется уравнением (2.10), а энергия рассеянного электрона определяется уравнением (2.11):

$$E'(\text{мин}) = m_0 c^2 / (2 + m_0 c^2 / E) \cong m_0 c^2 / 2 = 256 \text{ кэВ}, \quad (2.10)$$

если $E \gg m_0 c^2 / 2$.

$$E_e(\text{макс}) = E / [1 + m_0 c^2 / (2E)] \cong E - m_0 c^2 / 2 = E - 256 \text{ кэВ}, \quad (2.11)$$

если $E \gg m_0 c^2 / 2$.

Для малых углов рассеяния ($\phi \cong 0^\circ$) энергия рассеянного гамма-кванта не намного меньше, чем энергия падающего гамма-кванта, а рассеянный электрон получает от взаимодействия очень небольшую энергию. Энергия, переданная рассеянному электрону, изменяется в диапазоне почти от нуля до максимального значения, определяемого уравнением (2.11).

Когда комптоновское рассеяние происходит в детекторе, рассеянный электрон обычно останавливается в детектирующей среде, и детектор производит выходной импульс, пропорциональный энергии, потерянной падающим гамма-квантом. Комптоновское рассеяние в детекторе приводит к образованию спектра выходных импульсов, простирающегося от нуля до максимальной энергии, определяемой уравнением (2.11). Трудно соотнести спектр комптоновского рассеяния с энергией падающего гамма-кванта. На рис. 2.8 показан измеренный спектр гамма-квантов от моноэнергетического источника гамма-излучения (^{137}Cs). Пик полного поглощения при 662 кэВ образован взаимодействиями, в которых гамма-квант теряет всю свою энергию в детекторе либо в результате одно-

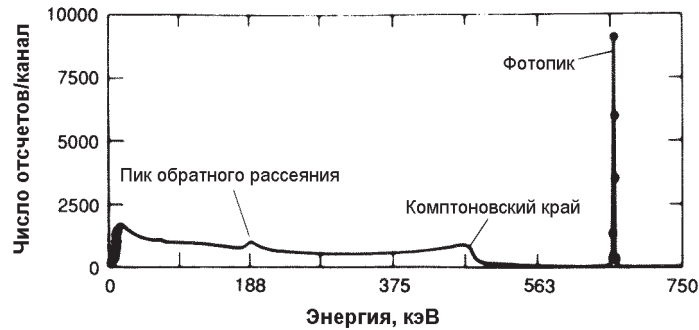


Рис. 2.8. Спектр высокого разрешения ^{137}Cs , на котором показаны пик полного поглощения (фотопик), комптоновский край и пик обратного рассеяния для гамма-кванта с энергией 662 кэВ. События ниже фотопика обусловлены комптоновским рассеянием в детекторе и окружающих его материалах

кратного фотоэлектрического поглощения, либо в результате серии комптоновских рассеяний, за которыми следует фотоэлектрическое поглощение. Спектр зарегистрированных событий, находящихся ниже пика полного поглощения, обусловлен событиями комптоновского рассеяния, в которых гамма-квант теряет в детекторе только часть своей энергии. Ступенька в области 470 кэВ соответствует максимальной энергии, которая может быть передана электрону гамма-квантом с энергией 662 кэВ в результате единичного комптоновского рассеяния. Эта ступенька называется комптоновским краем, энергия которого описывается уравнением (2.11) и показана на рис. 2.9. Небольшой пик в области 188 кэВ на рис. 2.8 называется пиком обратного рассеяния. Пик обратного рассеяния образуется, когда гамма-квант претерпевает рассеяние на большой угол ($\cong 180^\circ$) в материале, окру-

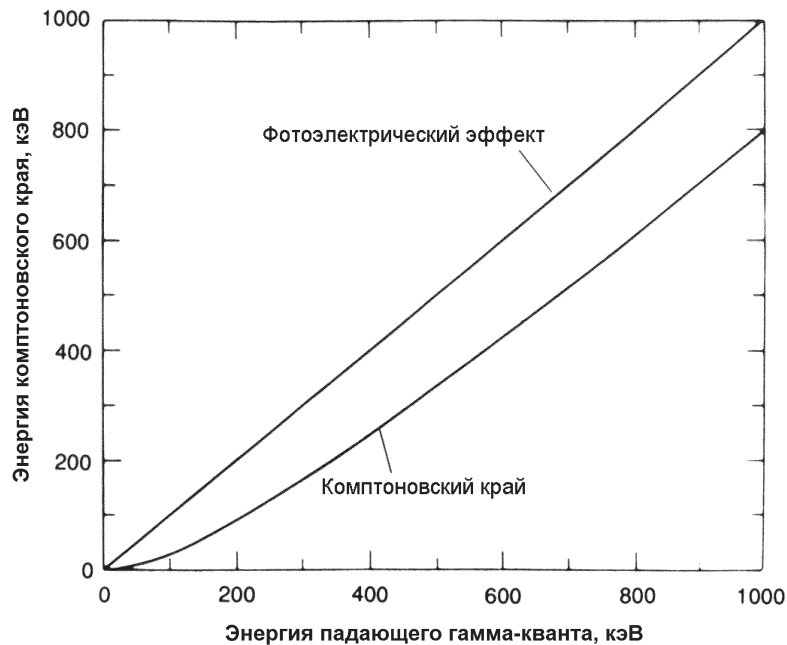


Рис. 2.9. Зависимость энергии комптоновского края от энергии падающего гамма-кванта

жающем детектор, и затем поглощается в детекторе. Энергия пика обратного рассеяния определяется уравнением (2.10), которое показывает, что максимальная энергия равна 256 кэВ. Сумма энергий пика обратного рассеяния и комптоновского края равна энергии падающего гамма-кванта. Обе характеристики появляются в результате комптоновского рассеяния падающего гамма-кванта на большой угол. Это событие дает вклад в пик обратного рассеяния, когда в детекторе теряет свою энергию только рассеянный гамма-квант и, соответственно, дает вклад в комптоновский край, если в детекторе теряет свою энергию только рассеянный электрон.

Поскольку в комптоновском рассеянии участвуют наименее связанные электроны, ядро оказывает незначительное влияние, и вероятность взаимодействия почти не зависит от его атомного номера. Вероятность взаимодействия зависит от плотности электронов, которая пропорциональна Z/A и почти постоянна для всех материалов. Вероятность комптоновского рассеяния представляет собой функцию, медленно изменяющуюся с энергией гамма-кванта (см. рис. 2.3).

2.3.3 Образование пар

Гамма-квант с энергией не менее 1,022 МэВ, находясь под влиянием сильного электромагнитного поля вблизи ядра, может образовать электрон-позитронную пару (см. рис. 2.10). При этом взаимодействии ядро приобретает небольшое количество энергии отдачи для сохранения импульса, но само ядро не изменяется, а гамма-квант исчезает. Такое взаимодействие имеет порог 1,022 МэВ, поскольку это минимальная энергия, которая необходима для образования электрона и позитрона. Если энергия гамма-кванта превышает 1,022 МэВ, избыточная энергия делится между электроном и позитроном в виде их кинетической энергии. Этот процесс взаимодействия не является существенным для анализа ядерных материалов, поскольку значения наиболее важных характерных энергий гамма-излучения находятся ниже 1,022 МэВ.

Электрон и позитрон, полученные в процессе образования пары, быстро замедляются в поглотителе. После потери кинетической энергии позитрон соединяется с электроном в аннигиляционном процессе, в результате которого высвобождаются два гамма-кванта с энергиями 0,511 МэВ. Эти гамма-кванты более низкой энергии далее могут провзаимодействовать с поглощающим материалом или покинуть его. Взаимодействие гамма-кванта высокой энергии в детекторе приводит к образованию трех пиков (см. рис. 2.11). Кинетическая энергия электрона и позитрона поглощается в детекторе. Один или оба аннигиляционных гамма-кванта могут покинуть детектор, либо оба гамма-кванта могут быть поглощены. Если в детекторе поглощаются оба аннигиляционных гамма-кванта, это взаимодействие дает вклад в пик полного поглощения измеряемого спектра. Если

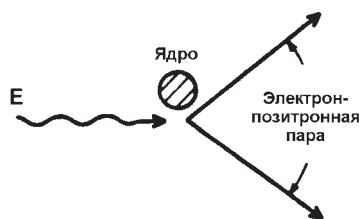


Рис. 2.10. Схема образования пары

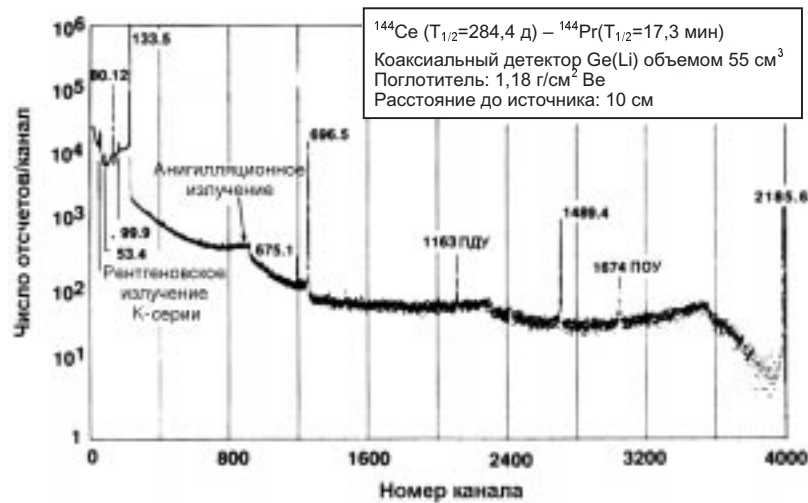


Рис. 2.11. Спектр гамма-излучения продукта деления ^{144}Pr , на котором показаны пики одиночной утечки (ПОУ) и пики двойной утечки (ПДУ) с энергиями 1674 и 1163 кэВ, соответственно, возникающие в результате взаимодействия в германиевом детекторе гамма-квантов с энергиями 2186 кэВ с образованием пар

один из аннигиляционных гамма-квантов покидает детектор, взаимодействие дает вклад в пик одиночной утечки, расположенный на 0,511 МэВ ниже пика полного поглощения. Если оба гамма-кванта покидают детектор, взаимодействие дает вклад в пик двойной утечки, расположенный на 1,022 МэВ ниже пика полного поглощения. Относительные высоты трех пиков зависят от энергии падающего гамма-кванта и размера детектора. Пики утечки могут возникать при измерении образцов облученного топлива, тория и ^{232}U , поскольку основные гамма-кванты этих материалов обладают энергиями выше порога образования пар. Облученное топливо иногда измеряют с использованием гамма-квантов с энергией 2186 кэВ продукта деления ^{144}Pr . Спектр гамма-излучения ^{144}Pr (см. рис. 2.11) содержит пики одиночной и двойной утечек, которые возникают в результате процесса образования пар в германиевом детекторе гамма-квантом с энергией 2186 кэВ.

Процесс образования пар невозможен для гамма-квантов с энергией ниже 1,022 МэВ. Выше этого порога вероятность взаимодействия быстро возрастает с энергией (см. рис. 2.3). Вероятность образования пар изменяется приблизительно как квадрат атомного номера Z и становится существенной для элементов с высоким Z , таких как свинец или уран. В свинце приблизительно 20 % взаимодействий гамма-квантов с энергией 1,5 МэВ проходят через процесс образования пар, и эта доля возрастает до 50 % при энергии 2,0 МэВ. Для углерода соответствующие доли взаимодействий составляют 2 и 4 %.

2.3.4 Полный массовый коэффициент ослабления

Все три процесса взаимодействия, описанные выше, вносят вклад в полный массовый коэффициент ослабления. Относительный вклад трех процессов взаимодействия зависит от энергии гамма-кванта и атомного номера поглотителя. На рис. 2.12 показан набор кривых массового ослабления, охватывающий широкий

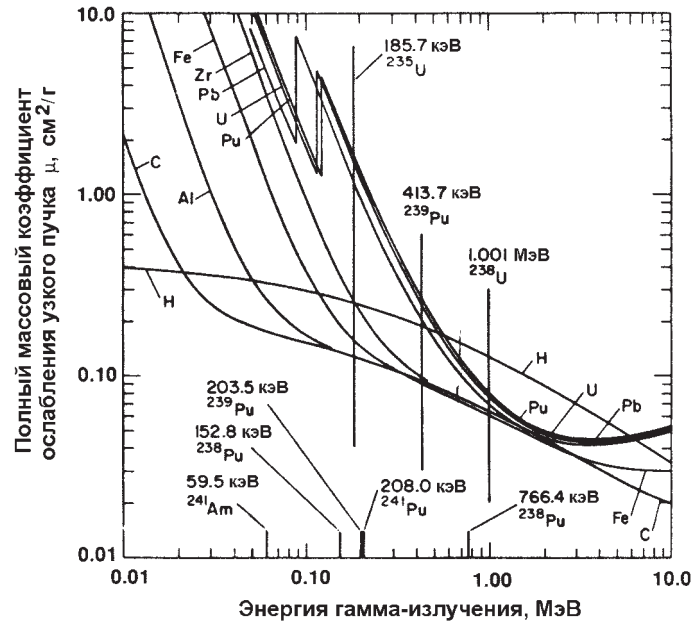


Рис. 2.12. Массовые коэффициенты ослабления некоторых элементов. Показаны энергии гамма-квантов, используемые обычно при НРА урана и плутония

диапазон энергий и атомных номеров. На нем ярко показано взаимное соотношение трех процессов. Коэффициент ослабления для всех элементов, за исключением водорода, имеет резкий подъем в области низких энергий, который указывает, что в этой области преобладающим процессом взаимодействия является фотоэлектрическое поглощение. Расположение этого подъема сильно зависит от атомного номера. Выше подъема в области низких энергий значение массового коэффициента ослабления постепенно снижается, определяя область, в которой преобладающим взаимодействием является комптоновское рассеяние. Массовые коэффициенты ослабления для всех элементов с атомным номером меньше, чем 25 (железо), практически идентичны в энергетическом диапазоне от 200 до 2000 кэВ. В диапазоне от 1 до 2 МэВ кривые ослабления сходятся для всех элементов. Форма кривой массового ослабления водорода показывает, что взаимодействие гамма-квантов с энергией больше 10 кэВ проходит почти исключительно путем комптоновского рассеяния. При энергиях выше 2 МэВ для элементов с высоким Z важным становится процесс взаимодействия с образованием пар, и массовый коэффициент ослабления снова начинает расти. Понимание основных закономерностей (см. рис. 2.12) очень полезно для понимания методик НРА.

2.4 ФИЛЬТРЫ

Во многих видах анализа измерение легче провести, если гамма-кванты более низких энергий будут поглощены до того, как они достигнут детектора. Эти низкоэнергетические гамма-кванты, если их не вывести из пучка, могут вызвать зна-

чительный рост числа просчетов, обусловленных большой загрузкой детектора, и искажение спектра. Процесс выведения гамма-квантов определенной энергии из пучка часто называется фильтрацией. Идеальный материал фильтра должен иметь коэффициент пропускания, равный нулю для гамма-квантов с энергией ниже рассматриваемого порога, и коэффициент пропускания, равный бесконечности для энергий выше этого порога. Как видно из рис. 2.12, такого материала не существует. Тем не менее, приемлемые фильтры могут быть получены путем выбора поглотителей с таким атомным номером, чтобы резкий рост сечения фотоэлектрического эффекта находился вблизи энергии гамма-квантов, которые должны быть ослаблены, но значительно ниже энергии анализируемых гамма-квантов.

Обычно фильтрация применяется для измерений спектров гамма-излучения плутония. Все плутониевые образцы, кроме только что прошедших процесс химического разделения от америция, имеют значительное количество ^{241}Am , который испускает очень интенсивное гамма-излучение с энергией 60 кэВ. В большинстве образцов это гамма-излучение является преобладающим в спектре и должно быть ослаблено для проведения точных измерений гамма-квантов плутония. Обычно для ослабления излучения ^{241}Am используется тонкий лист кадмия. В табл. 2.1 показано влияние кадмиевого фильтра на спектр излучения от диска из металлического плутония весом 2 г. В отсутствие фильтра в спектре преобладают гамма-кванты с энергией 60 кэВ, которые могут даже парализовать работу детектора. Кадмиевый фильтр толщиной от 1 до 2 мм существенно ослабляет линию 60 кэВ и лишь незначительно ослабляет линии плутония более высоких энергий. Спектр плутония в области энергий ниже 250 кэВ обычно измеряется с кадмиевым фильтром. Когда рассматриваются только гамма-кванты ^{239}Pu с энергией 414 кэВ, в качестве материала фильтра может быть использован свинец, поскольку он ослабит гамма-кванты с энергией в диапазоне от 100 до 200 кэВ и поглотит большинство гамма-квантов с энергией 60 кэВ. Интересно отметить, что при энергии 60 кэВ массовые коэффициенты ослабления свинца и кадмия практически равны, несмотря на высокий атомный номер свинца 82 по сравнению с атомным номером кадмия 48. Это обусловлено тем, что К-край свинца появляется при 88 кэВ, как было показано на рис. 2.5 в разделе 2.3.1.

Таблица 2.1 – Влияние кадмиевого фильтра на спектр плутония

Толщина поглотителя, см	Сигнал от плутония, имп./с*			
	60 кэВ	129 кэВ	208 кэВ	414 кэВ
0	$3,57 \times 10^6$	$1,29 \times 10^4$	$8,50 \times 10^4$	$2,02 \times 10^4$
0,1	$2,40 \times 10^4$	$0,67 \times 10^4$	$6,76 \times 10^4$	$1,85 \times 10^4$
0,2	$1,86 \times 10^2$	$0,34 \times 10^4$	$5,37 \times 10^4$	$1,69 \times 10^4$

* $^{241}\text{Am} = 0,135\%$; $^{239}\text{Pu} = 81,9\%$; $^{241}\text{Pu} = 1,3\%$. Сигнал от диска металлического плутония весом 2 г, диаметром 1 см, толщиной 0,13 см.

При измерении ^{235}U часто используется кадмиевый фильтр, поскольку он ослабляет гамма-кванты и рентгеновские кванты с энергией в диапазоне от 9 до

120 кэВ и не оказывает значительного влияния на гамма-кванты с энергией 186 кэВ от ^{235}U . Фильтры также могут использоваться в измерениях с облученным топливом. Гамма-кванты продуктов деления ^{144}Ce - ^{144}Pr с энергией 2186 кэВ измеряются в некоторых случаях в качестве индикаторов остатков топливного материала в выщелоченных отходах (шелухе), полученных на перерабатывающей установке (см. главу 18). Основная активность гамма-квантов продуктов деления находится в области от 500 до 900 кэВ и может быть выборочно снижена для гамма-квантов с энергией 2186 кэВ при использовании свинцового фильтра толщиной от 10 до 15 см.

Для ослабления характеристических рентгеновских квантов от основного материала фильтра перед тем как они провзаимодействуют с детектором иногда используют комбинированные фильтры из двух и более материалов. Когда гамма-кванты поглощаются в основном материале фильтра, в результате взаимодействия образуется большое количество рентгеновских квантов. Например, когда гамма-кванты ^{241}Am с энергией 60 кэВ поглощаются в тонком кадмиевом фильтре, может образоваться значительный поток рентгеновских квантов с энергией 23 кэВ. Если эти рентгеновские кванты перегружают детектор, их можно легко ослабить с использованием очень тонкого листа меди. Поскольку энергия рентгеновских квантов К-серии меди равная 8 кэВ, как правило, достаточно низка, они не мешают проведению измерений. Если материалом основного фильтра является свинец, для поглощения характеристических рентгеновских квантов К-серии свинца с энергиями 73 и 75 кэВ используется кадмий, а для поглощения характеристических рентгеновских квантов К-серии кадмия с энергией 23 кэВ используется медь. В комбинированных фильтрах материал с самым низким Z всегда располагается ближе к детектору.

2.5 ЗАЩИТА

В приборах НРА для ограничения отклика детектора от гамма-квантов фона и для защиты оператора и детектора от источников излучения пропускания и активации требуются защита и коллиматоры. Материалы защиты от гамма-излучения должны иметь высокую плотность и высокий атомный номер, так чтобы они имели высокий полный линейный коэффициент ослабления и высокую вероятность фотоэлектрического поглощения. Наиболее распространенным материалом защиты является свинец, поскольку он легко доступен, имеет плотность $11,35 \text{ г/см}^3$, атомный номер 82 и относительно недорог. Свинец может быть запрессован во множество форм; однако, вследствие высокой пластичности, он с трудом подвергается механической обработке или не держит заданную форму без фиксации более жестким материалом.

В некоторых случаях вместо свинца используется сплав вольфрама (атомный номер 74), потому что он имеет значительно более высокую плотность (17 г/см^3), легче подвергается механической обработке и хорошо сохраняет форму. В табл. 2.2 показаны некоторые ослабляющие свойства этих двух материалов. Для повышения возможности механической обработки, вольфрам сплавляется с никелем и медью. В табл. 2.2 показано, что при энергиях свыше 500 кэВ благодаря более высокой плотности сплав вольфрама имеет значительно более высокий линейный коэффициент ослабления, чем свинец. Таким образом, тот же защитный

эффект может быть достигнут, используя более тонкую защиту. При энергиях ниже 500 кэВ разность между ослабляющими свойствами двух материалов является менее значительной; более высокая плотность вольфрамового сплава нейтрализуется более низким атомным номером. Вольфрамовый сплав используется, когда объем защиты строго ограничен, или когда важны возможность механической обработки и механическая прочность. Однако вольфрам более чем в три раза дороже свинца, поэтому его расходуют экономно и практически никогда не используют для массивных защит. Сплав часто применяют для конструкционной поддержки интенсивных источников гамма-излучения, предназначенных для измерения коэффициентов пропускания, или для коллимации детекторов гамма-излучения.

Таблица 2.2 – Ослабляющие свойства свинца и вольфрама

энергия, кэВ	Коэффициент ослабления, см ⁻¹		Толщина, см*	
	свинец	вольфрам**	свинец	вольфрам**
1000	0,77	1,08	2,98	2,14
500	1,70	2,14	1,35	1,08
200	10,6	11,5	0,22	0,20
100	60,4	64,8	0,038	0,036

* Толщина поглотителя с 10 %-ным пропусканием.

** Сплав: 90 % вольфрама, 6 % никеля, 4 % меди.

ЛИТЕРАТУРА

1. R.D. Evans, *The Atomic Nucleus* (McGraw-Hill Book Co., New York, 1995).
2. G.F. Knoll, *Radiation Detection and Measurement* (John Wiley & Sons, New York, 1979).
3. E. Storm and H. Israel, "Photon Cross Sections from 0,001 to 100 MeV for Elements 1 through 100", Los Alamos Scientific Laboratory report LA-3753 (1967).
4. J.H. Hubbel, "Photon Cross Sections, Attenuation Coefficients, and Energy Absorption Coefficients from 10 keV to 100 GeV", National Bureau of Standards report NSRDS-NSB 29 (August 1969).

Глава 3

Детекторы гамма-излучения

*Хэйстингс А. Смит, мл. и Марша Лукас
(Переводчик Н.В. Мошкина)*

3.1 ВВЕДЕНИЕ

Для того чтобы гамма-квант был обнаружен, он должен провзаимодействовать с веществом и это взаимодействие должно быть зарегистрировано. К счастью, электромагнитная природа фотонов гамма-излучения позволяет им взаимодействовать с заряженными электронами атомов всех веществ. Ключевым процессом, посредством которого обнаруживается гамма-квант, является ионизация, в процессе которой он отдает часть или всю свою энергию электрону. Ионизационные электроны сталкиваются с другими атомами и высвобождают еще больше электронов. Освобожденный заряд собирается либо непосредственно (как в пропорциональном счетчике или твердотельном полупроводниковом детекторе), либо косвенным образом (как в сцинтилляционном детекторе), чтобы зарегистрировать гамма-квант и измерить его энергию. Окончательный результат этого процесса представляет собой электрический импульс, амплитуда которого пропорциональна энергии, потерянной гамма-квантом в детектирующей среде.

В этой главе мы представим общую информацию о типах детекторов гамма-излучения, которые используются в неразрушающем анализе (НРА) ядерных материалов. Электронное оборудование, связанное с регистрацией гамма-излучения, рассматривается в главе 4. Более углубленное рассмотрение конструкции и работы детекторов гамма-излучения можно найти в работах [1 и 2].

3.2 ТИПЫ ДЕТЕКТОРОВ

Для регистрации гамма-квантов и их энергий используется множество различных типов детекторов. В НРА обычно необходимо измерять не только количество излучения, выходящего из образца, но также его энергетический спектр. Таким образом, наиболее применяемыми детекторами для целей НРА являются детекторы, выходной сигнал которых пропорционален энергии, потерянной гамма-квантом в чувствительном объеме детектора.

3.2.1 Газонаполненные детекторы

Газонаполненные детекторы (газовые счетчики) состоят из чувствительного объема газа между двумя электродами (см. рис. 3.1). В большинстве конструкций внешний электрод представляет собой цилиндрическую стенку сосуда, наполненного газом под давлением, а внутренний (положительный) электрод — тонкий провод, расположенный в центре по оси цилиндра. В некоторых конструкциях

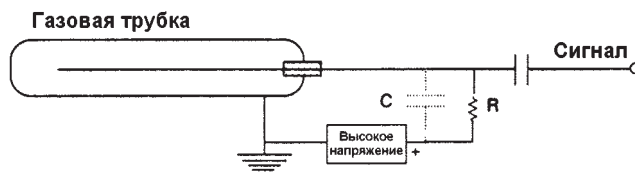


Рис. 3.1. Эквивалентная схема газонаполненного детектора. Газ составляет чувствительный (детектирующий) объем. Разность потенциалов между корпусом трубки и центральным электродом создает сильное электрическое поле в объеме газа. Электроны, образованные в результате газовой ионизации, перемещаются к центральному электроду под действием электрического поля, образуя на электроде зарядовое перенапряжение для каждого события регистрации

(особенно ионизационных камер) оба электрода могут быть погружены в газ и электрически изолированы от корпуса камеры.

Ионизационная камера представляет собой газонаполненный счетчик, у которого напряжение между электродами достаточно низкое, так что собирается только заряд первичной ионизации. Выходной электрический сигнал пропорционален энергии, потерянной в объеме газа.

Если напряжение между электродами увеличить, ионизационные электроны приобретут достаточно кинетической энергии, чтобы вызвать последующую ионизацию. Таким образом можно получить *пропорциональный счетчик*, который может быть приспособлен для конкретного применения путем изменения давления газа и/или рабочего напряжения. Выходной сигнал все еще пропорционален энергии, потерянной в объеме газа гамма-квантом, а энергетическое разрешение является промежуточным между разрешением сцинтилляционных счетчиков NaI и германиевых (Ge) полупроводниковых детекторов. Пропорциональные счетчики используются для спектрометрии гамма- и рентгеновских квантов, энергии которых достаточно низки (несколько десятков кэВ) для эффективного взаимодействия с газом счетчика.

Если рабочее напряжение увеличивать дальше, умножение заряда в объеме газа лавинообразно возрастает до тех пор, пока пространственный заряд, образованный остаточными ионами, не воспрепятствует дальнейшей ионизации. В результате, количество ионизации достигает максимума (происходит насыщение) и становится независимым от первоначальной энергии, потерянной фотоном в газе. Этот тип детектора известен как счетчик Гейгера-Мюллера. Газоразрядный счетчик Гейгера-Мюллера не различает разные типы частиц, которые он регистрирует, или их энергии; он считает только количество частиц, попавших в детектор. Этот тип детектора является основой традиционных дозиметров β и γ -излучения, используемых в технике безопасности.

В неразрушающем гамма-анализе ядерных материалов газонаполненные счетчики не находят широкого применения. Сцинтилляционные и твердотельные детекторы более предпочтительны для получения тонких спектральных характеристик в энергетическом диапазоне, типичном для излучения урана и плутония (приблизительно 100-1000 кэВ). Газонаполненные счетчики более подробно описаны в главе 13, поскольку они в основном используются для регистрации нейтронов.

3.2.2 Сцинтилляционные детекторы

Чувствительный объем сцинтилляционного детектора представляет собой люминесцентный материал (твердый, жидкий или газообразный), который "осматривается" прибором, регистрирующим вспышки света, вызванные гамма-квантами; обычно это фотоэлектрический умножитель (фотоумножитель, ФЭУ). Сцинтиллирующий материал может быть органическим или неорганическим; более распространен последний. Примерами органических сцинтилляторов являются антрацен, пластмассы и жидкости. Два последних являются менее эффективными, чем антрацен (эталон, с которым сравниваются все другие сцинтилляторы). Некоторыми из общепринятых неорганических сцинтилляционных материалов являются йодид натрия (NaI), йодид цезия (CsI), сульфид цинка (ZnS) и йодид лития (LiI). Наиболее традиционными сцинтилляционными детекторами являются твердые, а наиболее популярными — неорганические кристаллы NaI и CsI. Новый сцинтиллирующий материал германат висмута ($\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$), обычно обозначаемый как BGO, стал популярным в случаях, когда его высокая эффективность гамма-счета и/или его более низкая чувствительность к нейтронам перевешивают требования к энергетическому разрешению [3 и 4]. Всестороннее рассмотрение сцинтилляционных детекторов можно найти в работах [1, 2 и 5].

Когда гамма-кванты взаимодействуют с материалом сцинтиллятора, возникают ионизированные (возбужденные) атомы в материале сцинтиллятора, которые затем переходят в состояние с более низкой энергией и испускают фотоны света. В чистом неорганическом кристалле сцинтиллятора возвращение атома в состояние с более низкой энергией с испусканием фотона является малоэффективным процессом. Кроме того, испускаемые фотоны обычно обладают слишком высокой энергией по отношению к диапазону длин волн, к которым чувствителен ФЭУ. С целью увеличения испускания видимых фотонов ко всем сцинтилляторам добавляются небольшие количества примесей (называемых активаторами). Фотоны, возникающие при снятии возбуждения, проходя сквозь эти примеси добавляются к фотонам, которые могут активировать ФЭУ. Одним из важных следствий люминесценции через примеси активатора является то, что объем кристалла сцинтиллятора становится прозрачен для сцинтилляционного света. Типичным примером активированного сцинтиллятора, встречающимся в гамма-измерениях, является легированный таллием йодид натрия NaI(Tl).

Сцинтилляционный свет испускается изотропно, поэтому для минимизации потерь света сцинтиллятор обычно окружается отражающим материалом (таким, как MgO) и затем оптически соединяется с фотокатодом ФЭУ (см. рис. 3.2). Фотоны сцинтилляции попадают на фотокатод и высвобождают электроны посредством фотоэлектрического эффекта. Эти фотоэлектроны затем ускоряются сильным электрическим полем в ФЭУ. По мере того как фотоэлектроны ускоряются, они сталкиваются с электродами в трубке (называемыми динодами), высвобождая дополнительные электроны. Затем этот возросший поток электронов снова ускоряется до столкновения с последующими электродами, вызывая сильное умножение (с коэффициентом 10^4 и более) электронного потока от его первоначального значения на поверхности фотокатода. Наконец, усиленный зарядовый импульс прибывает на выходной электрод (анод) трубки. Амплитуда этого импульса пропорциональна первоначальному количеству заряда, освобожденного на фо-

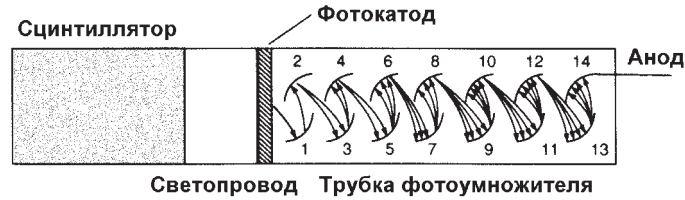


Рис. 3.2. Типичное расположение компонентов в сцинтилляционном детекторе. Часто оптический контакт сцинтиллятора с трубкой фотоумножителя осуществляется через светопровод. Расположение динодов (обозначения 1-13 на рис.) образует последовательные каскады электронов через объем трубки. Окончательный зарядовый импульс собирается на аноде и обычно передается на предусилитель для преобразования в импульс напряжения

токатоде ФЭУ; постоянная пропорциональности представляет собой коэффициент усиления ФЭУ. Кроме того, согласно природе фотоэлектрического эффекта, первоначальное число фотоэлектронов, освобожденных на фотокатоде, пропорционально количеству света, падающего на трубку фотоумножителя, которое, в свою очередь, пропорционально количеству энергии, потерянной в сцинтилляторе гамма-квантом (в предположении отсутствия потерь в объеме сцинтиллятора). Таким образом образуется выходной сигнал, пропорциональный энергии, потерянной гамма-квантом в сцинтиллирующей среде. Однако, как обсуждалось выше, измеренный энергетический спектр (даже для моноэнергетического потока фотонов) изменяется вследствие влияния на него фотоэлектрического эффекта, комптоновского эффекта и различных явлений рассеяния в сцинтиллирующей среде, а также в результате статистических флуктуаций, связанных со всеми этими процессами. Более подробно это обсуждается в разделе 3.3.

3.2.3 Твердотельные детекторы

В твердотельных детекторах заряд, образованный при взаимодействии фотонов, собирается непосредственно в детекторе. Разрешение по энергии гамма-излучения этих детекторов существенно лучше, чем сцинтилляционных детекторов, что позволяет измерять более тонкие спектральные характеристики и использовать их для оценок специальных ядерных материалов (СЯМ). Типовая схема твердотельных детекторов показана на рис. 3.3. Чувствительный объем представляет собой электронно-кондиционированную область (известную как обедненная

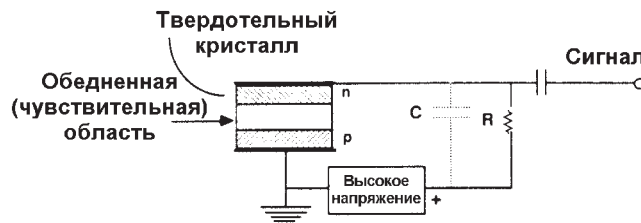


Рис. 3.3. Типичное расположение компонентов в твердотельном детекторе. Кристалл представляет собой обратнo-смещенный p-n переход, который проводит заряд при образовании ионизации в чувствительной области. Обычно сигнал подается на зарядо-чувствительный предусилитель для преобразования в импульс напряжения (см. главу 4)

область) в полупроводниковом материале, в которой свободно перемещаются электроны и дырки. Германий обладает наиболее идеальными электронными характеристиками в этом отношении и является наиболее широко используемым полупроводниковым материалом в твердотельных детекторах. Как видно из рис. 3.3, детектор действует как твердотельный пропорциональный счетчик, в котором ионизационный заряд перемещается в направлении электродов под действием электрического поля, образованного внешним источником высоковольтного питания. Предусилитель преобразует собранный заряд в импульс напряжения. В наиболее популярных ранних конструкциях в качестве детектирующей среды использовался литий-дрейфовый германий Ge(Li). Литий служит для подавления захвата заряда на примесях в кристаллической решетке в течение процесса сбора заряда. В последние годы производители детекторов создали кристаллы особо чистого германия (ОЧГ), что устранило необходимость в литии и упростило работу с детектором, при хранении которого не нужен жидкий азот.

Твердотельные детекторы производятся, в основном, в двух конфигурациях: планарной и коаксиальной. Эти термины относятся к форме кристалла детектора и способу его включения. Наиболее часто встречающиеся конфигурации детекторов представлены на рис. 3.4. Коаксиальные детекторы производятся либо с кристаллами с открытым концом (так называемые истинные коаксиальные) или с кристаллами с закрытым концом (см. рис. 3.4 (а,б)). В обоих случаях электрическое поле для сбора заряда является, в основном, радиальным, с некоторой осевой составляющей, присутствующей в конфигурациях с закрытым концом. Коаксиальные детекторы могут быть изготовлены с большими чувствительными объемами и, следовательно, с большими эффективностями регистрации при высоких энергиях гамма-квантов. Кроме того, радиальная геометрия электрического поля делает коаксиальные (особенно коаксиальные с открытым концом) твердотельные детекторы лучшими по быстродействию. Планарные детекторы состоят из кристалла либо с прямоугольным, либо с круглым поперечным сечением и толщиной чувствительного слоя от 1 до 20 мм (например, рис. 3.4 (в)). Электрическое поле перпендикулярно плоскости поперечного сечения кристалла. Толщина кристалла выбирается с учетом рассматриваемой области энергии гамма-излучения для измерений низких энергий (например, в L-области рентгеновского спек-

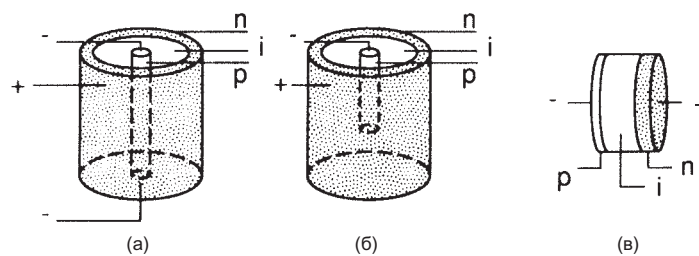


Рис. 3.4. Иллюстрация различных конфигураций кристаллов твердотельных детекторов: (а) цилиндрическая с открытым концом или истинно коаксиальная, (б) цилиндрическая с закрытым концом и (в) планарная. Соответствующими буквами отмечены полупроводниковые материалы p -типа и n -типа. Области, помеченные буквой i , представляют собой обедненные области, служащие чувствительными объемами детекторов. В терминах полупроводниковой техники, эта область рассматривается как область с собственной проводимостью или p - i - n переход

ра для специальных ядерных материалов). Наиболее оптимальна небольшая толщина. Планарные детекторы обычно обладают наилучшим энергетическим разрешением, благодаря их низкой емкости; они более предпочтительны для детальной спектрометрии, например, для анализа сложных спектров низкоэнергетических гамма- и рентгеновских квантов урана и плутония.

Из-за своего высокого разрешения полупроводниковые детекторы достаточно чувствительны к деградации рабочих характеристик вследствие радиационных повреждений. Количество повреждений, произведенных в кристалле детектора на единицу падающего потока, наибольшее для нейтронного излучения. Таким образом, в среде, в которой уровень нейтронного излучения высок (такой, как ускорители, реакторы или установки с интенсивными нейтронными источниками), будут наблюдаться самые значительные эффекты радиационных повреждений. Кроме того, эффекты радиационного повреждения могут иметь место в применениях НРА, в которых непрерывно измеряются большие количества ядерных материалов с использованием гамма-спектрометрического оборудования высокого разрешения, например, при измерении изотопов плутония в режиме с высокой пропускной способностью.

Основной эффект радиационного повреждения заключается в образовании смещенных атомов в кристалле детектора. Это увеличивает количество ловушек заряда, приводя к снижению амплитуды части импульсов в пике полного поглощения, и образованию низкоэнергетических хвостов у фотопиков спектра. В результате разрешение ухудшается, и детали спектра теряются. Пример такого вида эффекта показан на рис. 3.5 [6]. Обычно наблюдается, что значительное ухудшение рабочих характеристик детектора начинается с флюенса нейтронов приблизительно 10^9 н/см², и детекторы становятся непригодными к использованию при флюенсе приблизительно 10^{10} н/см² [7]. Однако новые ОЧГ кристаллы n-типа значительно менее подвержены повреждению нейтронами. Были описаны процедуры, при которых эффекты радиационного повреждения могут быть устранены посредством нагревания (отжига) кристалла детектора [8].

Дальнейшие подробности о конструкции и использовании твердотельных детекторов для гамма-спектрометрии можно найти в работах [1, 2 и 9].

В статическом состоянии конфигурация германиевого твердотельного детектора с обратно-смещенным диодом дает очень низкие токи утечки (обычно в диапазоне от пикоампер до наноампер). Этот ток можно еще уменьшить путем криогенного охлаждения кристалла от комнатной температуры до температуры жидкого азота (77 К). Такое охлаждение уменьшает естественный тепловой электрический шум в кристалле, но определяет основной недостаток таких детекторов: корпус детектора должен включать емкость для охлаждения, которая обычно представляет собой сосуд Дьюара, содержащий жидкий охладитель. В последние годы были сделаны попытки охлаждать материал детектора электрическим способом [10], но эти разработки все еще находятся в экспериментальной стадии и в самом начале коммерческого использования.

Другим популярным материалом твердотельных детекторов для спектрометрии фотонов является литий-дрейфовый кремний Si(Li). Более низкий атомный номер кремния по сравнению с германием снижает фотоэлектрическую эффективность примерно в 50 раз (см. главу 2), но этот тип детектора широко используется в измерениях рентгеновских спектров в области энергий от 1 до 50 кэВ и находит некоторое применение в рентгенофлуоресцентном анализе (РФА) (см.

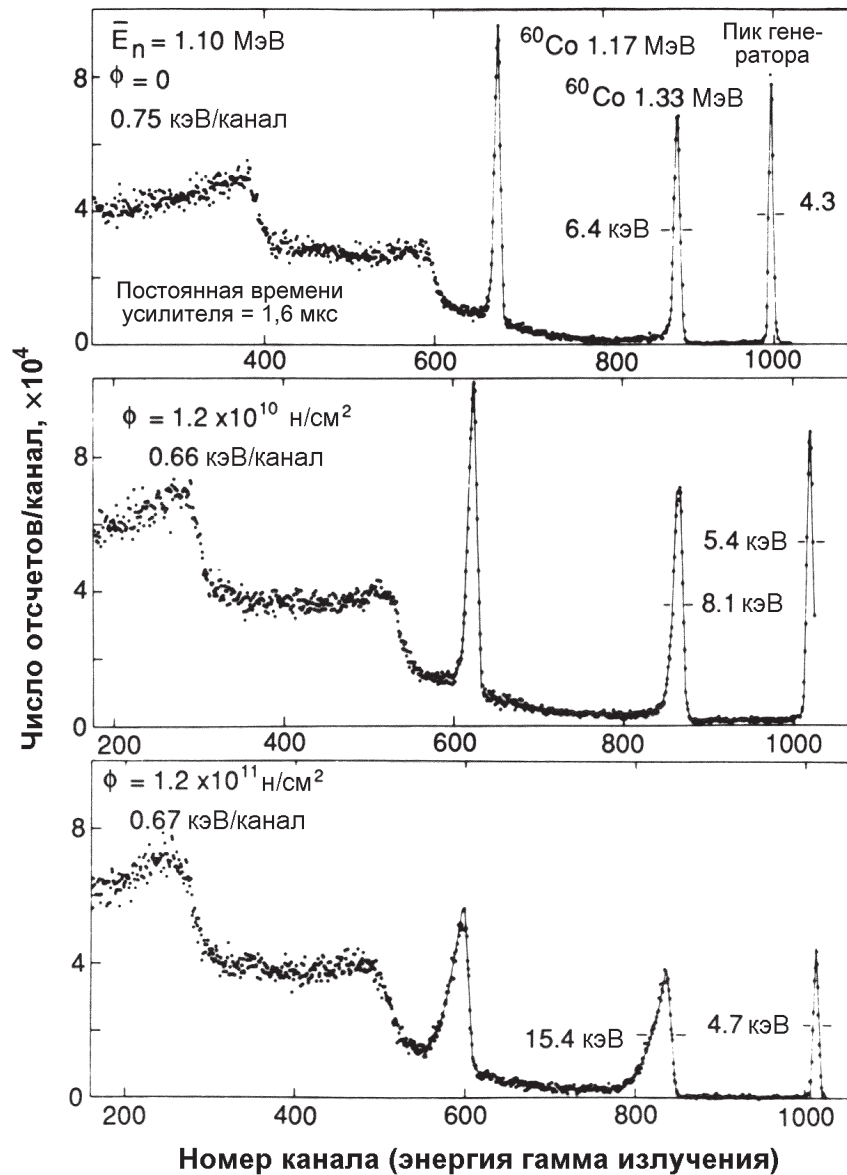


Рис. 3.5. Ухудшение гамма-спектра твердотельного детектора высокого разрешения с ростом флюенса нейтронов (Φ). Ширина фотопика ^{60}Co при энергии 1,33 МэВ указана на каждом спектре. Показана только высокоэнергетическая часть спектра. Также отмечена ширина пика электронного генератора (передано из работы [6])

главу 10). Низкая фотоэлектрическая эффективность кремния при энергиях выше 50 кэВ является преимуществом таких детекторов при измерении гамма- и рентгеновских квантов низких энергий, поскольку это означает, что чувствительность к гамма-квантам высоких энергий значительно снижается. Наиболее интенсивно кремниевые детекторы используются в спектрометрии заряженных частиц, а также для спектрометрии комптоновской отдачи гамма-квантов высокой энергии.

Помимо германия и кремния в гамма-спектрометрии применялись и другие твердотельные детектирующие среды. Для измерений в НРА, а также для многих других применений гамма-спектрометрии, было бы выгодно иметь детекторы высокого разрешения, работающие при комнатной температуре, тем самым исключая необходимость в громоздком оборудовании для охлаждения кристалла детектора. Работа при комнатной температуре таких полупроводниковых материалов, как CdTe, HgI₂ и GaAs была всесторонне исследована [11]. Их более высокие средние атомные номера обеспечивают большую фотоэлектрическую эффективность на единицу объема материала. Некоторые из их эксплуатационных характеристик представлены в табл. 3.1. Однако в настоящее время эти материалы для детекторов находят ограниченное применение в задачах НРА, главным образом вследствие невозможности изготовления достаточно больших кристаллов для обеспечения высокой эффективности регистрации, необходимой для НРА. С улучшением технологии выращивания кристаллов эти детекторы могут стать более привлекательными в качестве удобных детекторов высокого разрешения, работающих при комнатной температуре.

Таблица 3.1 – Сравнение нескольких материалов полупроводниковых детекторов

Материал детектора	Атомные номера	Энергия на образование пары электрон-дырка (δ)*	Наилучшее энергетическое разрешение при 122 кэВ**, кэВ
Ge (77 К)	32	2,96	0,46
CdTe (300 К)	48, 52	4,43	3,80
HgI ₂ (300 К)	80, 53	6,50	3,50
GaAs (300 К)	31, 33	4,2	2,60
NaI (300 К)***	11, 53		14,2

* Эта величина определяет число несущих зарядов, образованных в одном взаимодействии (см. раздел 3.3.3).

** Представительные данные по разрешению, взятые из таблиц в работе [12]. Энергетическое разрешение обсуждается дальше в разделе 3.3.3 и главе 5.

*** Будучи не полупроводниковым материалом, NaI включен в таблицу для удобства сравнения.

3.3 ХАРАКТЕРИСТИКИ РЕГИСТРИРУЕМЫХ СПЕКТРОВ

В гамма-спектрометрии детекторы образуют выходные импульсы, амплитуды которых пропорциональны энергии, потерянной в детектирующей среде падающими фотонами. Измерительная система включает метод анализа всех входных импульсов по амплитудам и представления их спектра. Основным инструментом для выполнения этой задачи является многоканальный анализатор (МКА), работа которого рассматривается в главе 4. Конечным результатом многоканального анализа является гистограмма (спектр) зарегистрированных выходных импульсов, отсортированных по амплитуде. Спектр амплитуд импульсов представляет собой непосредственное отражение энергетического спектра взаимодействий гамма-квантов в детектирующей среде и составляет спектрометрическую информацию, используемую в НРА.

3.3.1 Общий отклик детектора

Независимо от типа используемого детектора, измеренные спектры имеют много общих черт. Рассмотрим спектр моноэнергетического источника гамма-излучения с энергией E_0 , представленный на рис. 3.6 (а). Гамма-кванты возникают в ядерных переходах, которые сопровождаются специфическими изменениями энергии. Эти значения энергии испытывают незначительные флуктуации в вследствие двух эффектов: 1 — квантовых неопределенностей в энергиях переходов (так называемая неопределенность Гейзенберга) и 2 — эффектов отдачи при испускании фотонов гамма-излучения. Эти неопределенности являются конечными, однако они незначительны по сравнению с другими эффектами энергетического расширения спектра, обсуждаемыми ниже, и поэтому не показаны на рисунке. Таким образом, "идеальный" спектр моноэнергетического гамма излучения от свободно распадающегося ядра, по существу, представляет собой острую линию при энергии E_0 .

Поскольку регистрируемые гамма-кванты обычно исходят не из свободного ядра, а испускаются ядерным материалом, часть из них подвергается рассеянию перед тем, как они покинут радиоактивный образец. В результате этого рассеяния подвергшиеся ему фотоны обретают энергию чуть меньшую, чем E_0 , а энергетический спектр фотонов, испущенных из образца материала, слегка расширен в энергетической области ниже E_0 , как показано на рис. 3.6 (б). Величина этого расширения совсем невелика по сравнению с другими эффектами, рассматриваемыми ниже, и преувеличена на рис. 3.6 (б), чтобы привлечь внимание к ее существованию. Следует также отметить, что некоторые гамма-кванты, покинув образец, будут рассеяны внешними материалами перед тем, как они попадут в детектор, и этот эффект может проявиться в окончательном энергетическом спектре (см. ниже).

Когда гамма-квант попадает в детектирующую среду, он передает часть или всю свою энергию атомному электрону, высвобождая электрон из его атомной оболочки. Обычно этот освобожденный электрон затем передает свою кинетическую энергию в серии столкновений в детектирующей среде другим атомным электронам.

Количество энергии, необходимой для образования пары электрон-ион в детектирующей среде, определяет полный заряд, который образует выходной им-

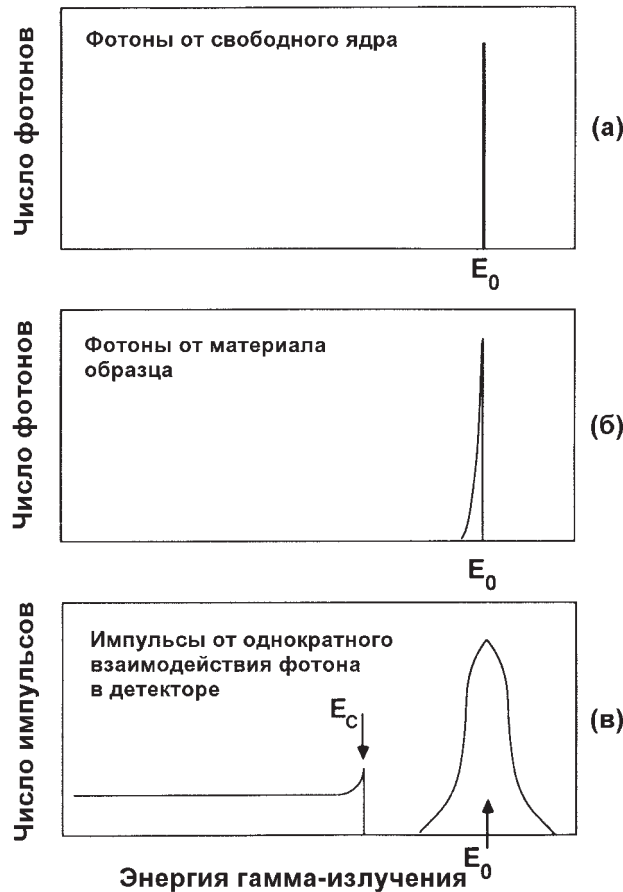


Рис. 3.6. Идеальный фотонный спектр:

а – образованный свободным ядром;

б – испущенный материалом образца;

в – образованный в результате взаимодействий в детектирующей среде

пульс (см. табл. 3.1). В фотоэлектрическом взаимодействии вся энергия падающего фотона передается фотоэлектрону, который впоследствии вызывает множественные ионизации до тех пор, пока его энергия не исчерпается. Следовательно, количество заряда, образованного в результате события этого типа, пропорционально фактической энергии фотона. В процессе комптоновского рассеяния падающий фотон передает ионизационному электрону только часть своей энергии. Впоследствии этот электрон вызывает ионизации до тех пор, пока его энергия тоже не израсходуется. Количество заряда, образованного в результате события этого типа, пропорционально доле энергии, первоначально потерянной падающим фотоном, но не содержит полезной информации о его фактической энергии. События многократного комптоновского рассеяния для одного фотона могут привести к образованию заряда, количество которого близко к значению полной энергии исходного фотона. Однако сигналы, образованные в результате комптоновского рассеяния, в основном, представляют одно взаимодействие рассеяния и

ниже по амплитуде, чем сигналы полной энергии. Идеализированный отклик детектора на фотоэлектрическое и комптоновское взаимодействия в детектирующей среде показан на рис. 3.6 (в). Максимальная энергия, которая может быть оставлена в детектирующей среде в результате комптоновского рассеяния, соответствует рассеиванию фотона на угол 180° . Таким образом, импульсы детектора, образованные от комптоновского рассеяния, распределены в области ниже этой максимальной энергии (E_c на рис. 3.6 (в)) и составляют источник "фоновых" импульсов, которые не содержат полезной информации об энергии фотона.

Пик полного поглощения (см. рис. 3.6 (в)) значительно расширен вследствие статистических флуктуаций количества пар электрон-ион, образованных фотоэлектроном. Такой эффект вносит основной вклад в ширину пика полного поглощения и, тем самым, является доминирующим фактором, определяющим энергетическое разрешение детектора (см. раздел 3.3.3).

3.3.2 Спектральные характеристики

Более реалистичное представление гамма-спектра, образованного детектором от потока моноэнергетических гамма-квантов, показано на рис. 3.7. Спектральные характеристики, отмеченные буквами от А до Ж, описаны ниже.

А. Пик полного поглощения (фотопик). Этот пик объединяет импульсы, возникающие в результате фотоэлектрических взаимодействий с полной потерей энергии в детектирующей среде. Некоторые отсчеты возникают также в результате единичных или многократных событий комптоновского рассеяния, за которыми следует фотоэлектрическое поглощение. Ширина этого пика определяется, в основном, статистическими флуктуациями величины заряда, образованного этими взаимодействиями, а также вкладом от электроники обработки импульсов (см. раздел 3.3.3 и главу 4). Центроида пика соответствует энергии фотона E_0 . Площадь пика за вычетом фона представляет полное число взаимодействий с

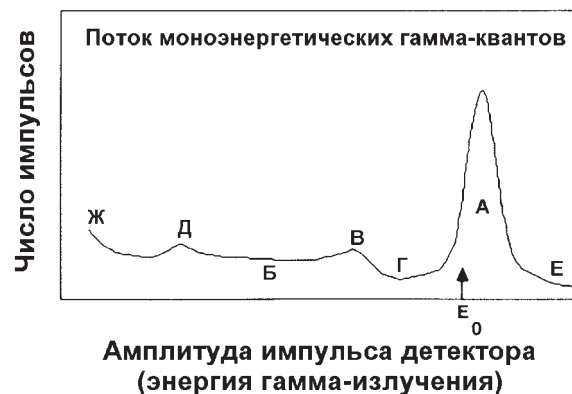


Рис. 3.7. Реалистичное представление спектра детектора гамма-излучения от моноэнергетического источника гамма-квантов. Отмеченные спектральные характеристики описаны в тексте

полной потерей энергии в детекторе и обычно пропорциональна массе излучающего изотопа.

Б. Континуум комптоновского фона. Эти импульсы, гладко распределенные до максимальной энергии E_c (см. рис. 3.6), образуются в результате взаимодействий, происходящих только с частичной потерей энергии фотона в детекторе. В более сложных спектрах комптоновское рассеяние является основным источником фоновых отсчетов под пиками полного поглощения.

В. Комптоновский край. Это часть спектра, которая соответствует максимальной потере энергии падающим фотоном в процессе комптоновского рассеяния. Она представляет собой широкий асимметричный пик, соответствующий максимальной энергии E_c , которую фотон гамма-излучения с энергией E_0 может передать свободному электрону в *однократном* событии рассеяния. Это соответствует "лобовому" столкновению между фотоном и электроном, в результате которого электрон движется вперед, а гамма-квант рассеивается назад на 180° (см. раздел 2.3.2). Энергия комптоновского края определяется уравнением (2.11).

Г. "Комптоновская долина". Для моноэнергетического источника импульсы в этой области возникают либо в результате многократного комптоновского рассеяния, либо в результате взаимодействий с полной потерей энергии фотонами, которые подверглись рассеянию на небольшие углы (в материале источника или в промежуточных материалах) перед тем, как попасть в детектор. Нерассеянные фотоны моноэнергетического источника не могут образовывать импульсы в этой области в результате *однократного* взаимодействия в детекторе. В более сложных спектрах эта часть спектра может содержать импульсы, образованные в результате комптоновского рассеяния фотонов более высоких энергий.

Д. Пик обратного рассеяния. Этот пик обусловлен гамма-квантами, которые подверглись комптоновскому рассеянию в одном из материалов, окружающих детектор. Гамма-кванты, рассеянные более чем на $110-120^\circ$, будут иметь почти одинаковые энергии в диапазоне от 200 до 250 кэВ. Следовательно, вклад от моноэнергетического источника будет представлять множество рассеянных гамма-квантов, энергии которых находятся вблизи этого минимального значения (см. [1] и раздел 2.3.2). Энергия пика обратного рассеяния дается уравнением (2.10).

Е. Область избыточной энергии. В случае моноэнергетического источника события в этой области обусловлены гамма-квантами высоких энергий и мюонами космического излучения, присутствующего в естественном фоне, и событиями наложения импульсов, если скорость счета достаточно высока (см. главу 4). В более сложных спектрах отсчеты выше данного фотопика в основном представляют собой события комптоновского рассеяния гамма-квантов более высоких энергий.

Ж. Подъем в области низких энергий. Эта характеристика спектра, очень близкая к области "нулевой амплитуды импульса", возникает, как правило, от низкоамплитудного электронного шума в детектирующей системе, который вос-

принимается аналогично низкоамплитудным импульсам детектора. Существует тенденция появления такого шума при довольно высокой частоте следования импульсов и, таким образом, проявляется как явление высокой скорости счета. Электронный шум обычно отфильтровывается электронным способом (см. главу 4), так что этот эффект обычно не подавляет показываемый спектр. В более сложных спектрах гамма-излучения, содержащих много разных энергий фотонов, черты комптоновского края и пика обратного рассеяния стремятся к “размыванию”, оставляя, в основном, пики полного поглощения на относительно гладком комптоновском фоне.

3.3.3 Разрешение детектора

Энергетическое разрешение детектора — это мера его способности различать (разрешать) два пика, которые близки друг к другу по энергии. Параметром, используемым для указания разрешения детектора, является полная ширина фотопика (пики полного поглощения) на половине его высоты FWHM (называемая полушириной пика — прим. пер.). Если предположить, что фотопик имеет стандартную форму распределения Гаусса, полуширина дается уравнением:

$$\text{FWHM} = 2\sigma\sqrt{\ln 2}, \quad (3.1)$$

где σ — параметр ширины распределения Гаусса.

Высокое разрешение (небольшая полуширина пика) не только облегчает индивидуальное определение близко лежащих пиков, но также снижает неопределенность вычитания комптоновского континуума, поскольку оно занимает меньшую часть спектра в области пика. Чем сложнее спектр гамма-излучения, тем желательней иметь наилучшее из возможных энергетическое разрешение.

Существуют как естественные, так и технологические ограничения того, насколько точно детектирующая система может зарегистрировать энергию события регистрации гамма-излучения. Естественное ограничение точности определения энергии возникает, в основном, из-за статистических флуктуаций, связанных с процессами образования заряда в детекторе. Положения пиков полного поглощения могут также быть искажены такими электронными эффектами, как шум, наложение импульсов, некорректная установка схемы “полюс-ноль” и т.п. Эти электронные эффекты стали менее важными с усовершенствованием технологии, но их возможное влияние на разрешение должно учитываться при установке измерительной системы. Влияние электронных эффектов и окружающей среды на разрешение детектора более подробно обсуждается в главе 4.

В применениях неразрушающего гамма-анализа наиболее широко используются два типа детекторов: сцинтилляционный детектор NaI(Tl) и германиевый твердотельный детектор. Пики полного поглощения, образованные детектором NaI, гораздо шире, чем образованные германиевым детектором. Это проиллюстрировано на рис. 3.8, где множество деталей, присутствующих в германиевом спектре гамма-излучения плутония, потеряно в соответствующем спектре от NaI.

Рассматривая статистический предел точности определения энергии, возможно понять источник различия энергетических разрешений, достижимых с различными типами детекторов. В идеале число электронных зарядов n , образованных основными событиями регистрации, зависит от полной потерянной энер-

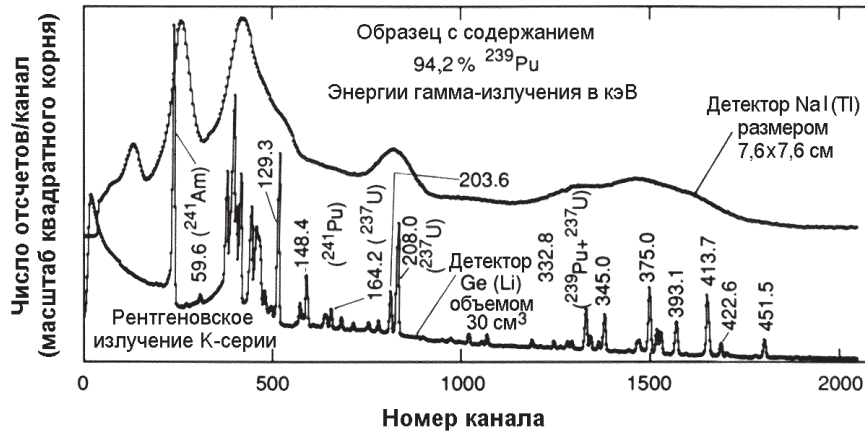


Рис. 3.8. Спектр гамма-излучения плутониевого образца с содержанием ^{239}Pu 94,2 %, полученный с использованием твердотельного детектора $\text{Ge}(\text{Li})$ высокого разрешения и сцинтилляционного детектора NaI

гии E и среднего количества энергии δ , необходимого для образования пары электрон-ион:

$$n = E / \delta. \quad (3.2)$$

Случайная статистическая дисперсия в числе n является основным источником флуктуаций в амплитуде импульса полной энергии. Однако для некоторых типов детекторов наблюдается, что эта статистическая дисперсия меньше (т.е. лучше) теоретического значения на коэффициент, известный как фактор Фано [13]:

$$\sigma^2(n) = Fn = FE / \delta. \quad (3.3)$$

Этот эффект обусловлен тем, что часть энергии, потерянной падающим фотоном, идет на формирование ионных пар, а часть — на нагревание структуры кристаллической решетки (тепловая энергия). Деление энергии между нагреванием и ионизацией носит статистический характер. В отсутствие конкурирующего процесса нагревания вся энергия падающего фотона пошла бы на образование ионной пары, и не существовало бы статистической флуктуации в числе n ($F=0$). И наоборот, если вероятность образования ионной пары мала, то статистические флуктуации были бы доминирующими ($F \approx 1$). Для сцинтилляторов коэффициент F приблизительно равен единице; для германия, кремния и газов он составляет приблизительно 0,15 [1 и 2]. Поскольку число носителей заряда n пропорционально потерянной энергии фотона (см. уравнение (3.2)), статистическая доля относительного энергетического разрешения дается выражением:

$$\Delta E_{\text{стат}} / E = 2,35\sigma(n) / n = 2,35[F\delta / E]^{1/2}. \quad (3.4)$$

В табл. 3.2 сравниваются статистические пределы разрешений для нескольких типов детекторов. Вклад электроники в флуктуации энергии ($\Delta E_{\text{электр}}$) по существу независим от энергии фотона и определяется, главным образом, емкостью детектора и предусилителем. Таким образом, полное энергетическое разрешение может быть выражено как комбинация электронных и статистических эффектов:

$$\Delta^2 E_{\text{полн}} = \Delta^2 E_{\text{электр}} + \Delta^2 E_{\text{стат}} = \alpha + \beta E. \quad (3.5)$$

На рис. 3.9 [14] сравниваются энергетические разрешения сцинтиляционного, газового и твердотельного детекторов в низкоэнергетическом рентгеновском диапазоне. Методики измерений разрешения описаны в разделе 5.2.

Представленный здесь довод предполагает, что эффективность сцинтилляции является основным фактором, влияющим на число электронов, образованных на фотокатоде сцинтиляционного детектора. Также важную роль играют и другие факторы, например, такие как прозрачность сцинтиллятора. Для эффективной работы в качестве детектора, сцинтиллирующий материал должен иметь высокую прозрачность для своего собственного света сцинтилляции. Аналогичным образом, такие факторы, как, например, подвижность носителей заряда, играют важную роль в определении разрешения твердотельного детектора. По необходимости данное обсуждение упрощено, но оно иллюстрирует основную причину, почему разрешение германиевых детекторов намного лучше, чем разрешение сцинтиляционных детекторов. Для более полного рассмотрения вопроса о разрешении детектора см. [1].

Таблица 3.2 – Теоретическое статистическое энергетическое разрешение при энергии 300 кэВ для различных типов детекторов гамма-излучения

Детектирующая среда	Средняя энергия δ^* , эВ	Число электронов n при 300 кэВ**	Относительная погрешность в числе n^{***}	Энергетическое разрешение****, кэВ	Высокоэнергетическое разрешение*****, кэВ
Ge	2,96	$1,0 \times 10^5$	0,0032	0,86	1,60
Газ	30,00	$1,0 \times 10^4$	0,010	2,73	—
NaI	—*****	$1,0 \times 10^3$	0,032	22,6	30,0
BGO	—*****	$8,0 \times 10^1$	0,11	77,6	100,0

* Средняя энергия, необходимая для образования одной пары электрон-ион в детектирующей среде.

** Отношение E/δ для $E=300$ кэВ (уравнение (3.2)).

*** Величина $\sigma(n)/n$ или $(1/n)^{1/2}$ без учета фактора Фано.

**** Статистическая доля энергетического разрешения $\Delta E_{\text{стат}}$ из уравнения (3.4). Используемые факторы Фано равнялись: 0,15 для германия и газа и 1,0 для сцинтилляторов. Это средние значения для целей иллюстрации.

***** Разрешение при энергии 1332 кэВ (^{60}Co) вычислено также, как в предыдущем столбце, но с использованием более высокой энергии. Значения для газонаполненных детекторов не показаны, поскольку они не эффективны для спектрометрии при таких высоких энергиях.

***** Поскольку измеренный заряд собирается в сцинтиляционных детекторах не прямым путем, эта величина к делу не относится; типичное число электронов, образованных на фотокатоде фотоумножителя на кэВ для NaI взято из [1], а число электронов для BGO получено на том основании, что его эффективность сцинтилляции составляет приблизительно 8 % от эффективности NaI [1].

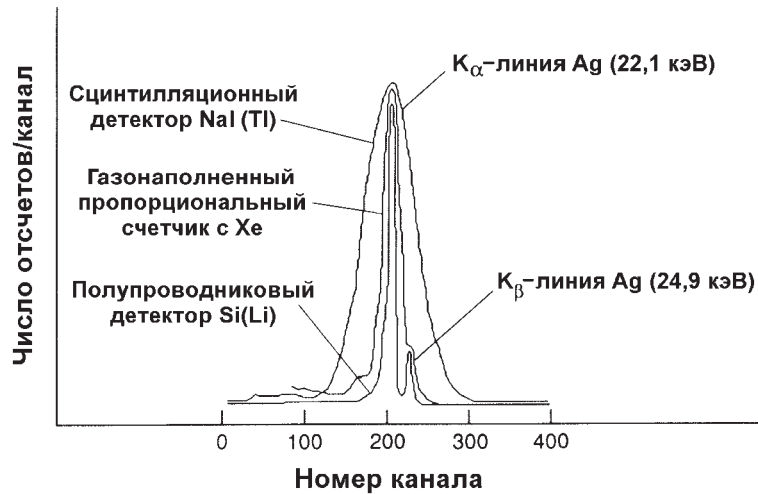


Рис. 3.9. Разрешение сцинтилляционного детектора NaI , газового пропорционального счетчика и полупроводникового детектора $\text{Si}(\text{Li})$ для первичного рентгеновского излучения серебра (переделано из [14])

3.3.4 Эффективность детектора

Основным определением абсолютной (полной) эффективности регистрации фотонов является

$$\epsilon_{\text{полн}} = \frac{\text{полное число зарегистрированных фотонов в пике полного поглощения}}{\text{полное число зарегистрированных фотонов, испущенных источником}}. \quad (3.6)$$

Для продолжения обсуждения мы будем рассматривать только события с полным поглощением энергии и, таким образом, только эффективность регистрации полной энергии. Полная эффективность может быть выражена в виде произведения четырех коэффициентов:

$$\epsilon_{\text{полн}} = \epsilon_{\text{геом}} \epsilon_{\text{погл}} \epsilon_{\text{обр}} \epsilon_{\text{собств}}. \quad (3.7)$$

Геометрическая эффективность $\epsilon_{\text{геом}}$ представляет собой долю испущенных фотонов, которые попадают в детектор. Для точечного источника она определяется выражением

$$\epsilon_{\text{геом}} = A / (4\pi r^2), \quad (3.8)$$

где A — площадь поперечного сечения детектора;

r — расстояние между источником и детектором (описывается в разделе 5.5).

Этот коэффициент по существу не зависит от энергии фотона. Он отражает хорошо известный закон обратных квадратов для скорости счета, как функции расстояния между источником и детектором.

Эффективность поглощения $\epsilon_{\text{погл}}$ учитывает влияние промежуточных материалов (таких как корпус детектора, специальные поглотители и т.п.), которые поглощают часть входящего излучения перед тем, как оно провзаимодействует с детектором. Этот коэффициент особенно важен (он должен быть $\ll 1$) для низко-

энергетических фотонов, для которых эффекты поглощения наиболее выражены. Математическая форма этого коэффициента имеет вид:

$$\epsilon_{\text{погл}} = \exp\left[-\sum \mu_i(E_\gamma)\rho_i x_i\right], \quad (3.9)$$

где μ_i — массовый коэффициент поглощения i -го промежуточного материала;

ρ_i — плотность i -го промежуточного материала;

x_i — толщина i -го промежуточного материала.

Суммирование проводится по всем типам промежуточных материалов.

Эффективность образца $\epsilon_{\text{обр}}$ представляет собой обратную величину поправки на самопоглощение в образце ($CF_{\text{ослабл}}$), рассматриваемой в главе 6. Эта величина представляет собой долю испущенных гамма-квантов, которые реально покидают материал образца. Например, в пластине толщиной x и с коэффициентом пропускания T , равным $\exp[-(\mu x)_s]$, эффективность образца равна

$$\epsilon_{\text{обр}} = \frac{1 - \exp[-(\mu x)_s]}{(\mu x)} = \frac{T - 1}{\ln T}. \quad (3.10)$$

Этот коэффициент зависит от состава каждого образца.

Собственная эффективность $\epsilon_{\text{собств}}$ представляет собой вероятность того, что гамма-квант, который попадает в детектор, взаимодействует и даст импульс в пик полного поглощения. Простейшим образом эту эффективность можно получить из стандартной формулы поглощения:

$$\epsilon_{\text{собств}} = 1 - \exp(-\mu x), \quad (3.11)$$

где μ — фотоэлектрический массовый коэффициент ослабления;

ρ — плотность чувствительного материала детектора;

x — толщина чувствительного материала детектора.

Это простое выражение дает заниженную оценку собственной эффективности, поскольку пик полного поглощения может также содержать события от многократного комптоновского рассеяния. В общем, $\epsilon_{\text{собств}}$ является также слабой функцией γ , вследствие регистрации гамма-квантов, падающих не по оси. Эмпирически, $\epsilon_{\text{собств}}$ может быть выражена степенным законом следующей формы:

$$\epsilon_{\text{собств}} \propto aE_\gamma^{-b}. \quad (3.12)$$

Еще одним важным термином является *относительная эффективность*, которая имеет два значения:

- *Относительно NaI*: обычно на практике указывают эффективность германиевого детектора для энергии 1332 кэВ (^{60}Co) в процентах от эффективности детектора NaI размером 7,6×7,6 см на расстоянии между источником и детектором 25 см и при той же энергии гамма-излучения:

$$\epsilon_{\text{отн NaI}}(\text{Ge}) = 100\epsilon_{\text{полн}}(\text{Ge}, 1332 \text{ кэВ}) / \epsilon_{\text{полн}}(\text{NaI}, 1332 \text{ кэВ}). \quad (3.13)$$

Теоретическое значение $\epsilon_{\text{полн}}(\text{NaI}, 1332 \text{ кэВ})$ на расстоянии 25 см равно $1,2 \times 10^{-3}$. Таким образом, например, германиевый детектор с относительной эффективностью 30 % имеет теоретическую полную эффективность для энергии 1332 кэВ на расстоянии 25 см, равную $3,6 \times 10^{-4}$.

- *Кривая относительной эффективности*: (также называется градуировкой по собственной эффективности). Это составная кривая зависимости отно-

шения зарегистрированной скорости счета к испущенной скорости счета от энергии представляется выражением:

$$\epsilon_{\text{отн}} = N \epsilon_{\text{погл}} \epsilon_{\text{обр}} \epsilon_{\text{собств}}. \quad (3.14)$$

Коэффициент N подчеркивает то, что в большинстве аналитических ситуаций абсолютное значение полной эффективности является не таким важным, как относительные значения при различных энергиях. Эта эффективность также включает энергетически зависимый эффект самопоглощения в образце $\epsilon_{\text{обр}}$ (см. главу 6 и уравнение (3.10)) и, таким образом, должна определяться для каждого измеряемого образца.

Полная относительная эффективность может быть вычислена полутеоретически или (что более благоразумно) измерена с использованием нескольких различных гамма-квантов от одного изотопа. Различные аспекты относительной эффективности и вопросы ее измерения более подробно рассматриваются в главе 8, а пример кривой относительной эффективности, включающий самопоглощение в образце, показан на рис. 8.14.

Обычно эффективности детектора измеряются и описываются, как полные эффективности фотопика для регистрации гамма-квантов от неослабляющих точечных источников. Следовательно, их зависимость от энергии определяется, в основном, $\epsilon_{\text{собств}}$ при высоких энергиях и $\epsilon_{\text{погл}}$ — при более низких энергиях; геометрический коэффициент $\epsilon_{\text{геом}}$ определяет предельную амплитуду эффективности. Собственная эффективность и эффективность поглощения сильно зависят от энергии падающего фотона, как показано на рис. 3.10 и 3.11 [15], где представлена типичная энергетическая зависимость эффективности детектора для планарного и коаксиального Ge(Li) детекторов, соответственно.

Эти рисунки приводят к трем основным выводам:

1. Сильная энергетическая зависимость полной эффективности регистрации приводит к тому, что зарегистрированные интенсивности фотонов значительно отличаются от интенсивностей испущенных фотонов. Для выполнения количественного анализа, включающего сравнение интенсивностей различных гамма-квантов, необходимо учитывать эту поправку энергетически зависимой эффективности.

2. При выполнении анализа низкоэнергетических гамма-квантов следует использовать тонкие объемы детектора. Это позволяет оптимизировать эффективность регистрации в области низких энергий и снизить эффективность регистрации нежелательных высокоэнергетических гамма-квантов.

3. При выполнении анализа гамма-квантов с высокими энергиями для обеспечения достаточной эффективности регистрации более проникающего излучения должны использоваться толстые детекторы. Кроме того, выбранные поглотители на входе детектора могут уменьшить вклад в скорость счета от нежелательного низкоэнергетического излучения.

Хотя на рис. 3.10 и 3.11 эти особенности проиллюстрированы для полупроводниковых детекторов, эти заключения применимы также и к детекторам NaI. Например, измерения обогащения урана по линии 186 кэВ обычно выполняются со сцинтилляционным кристаллом размером 5×1,27 см, в то время как анализ плутония по линии 414 кэВ обычно делается с увеличенными по оси сцинтилляторами размером 5×5 см.

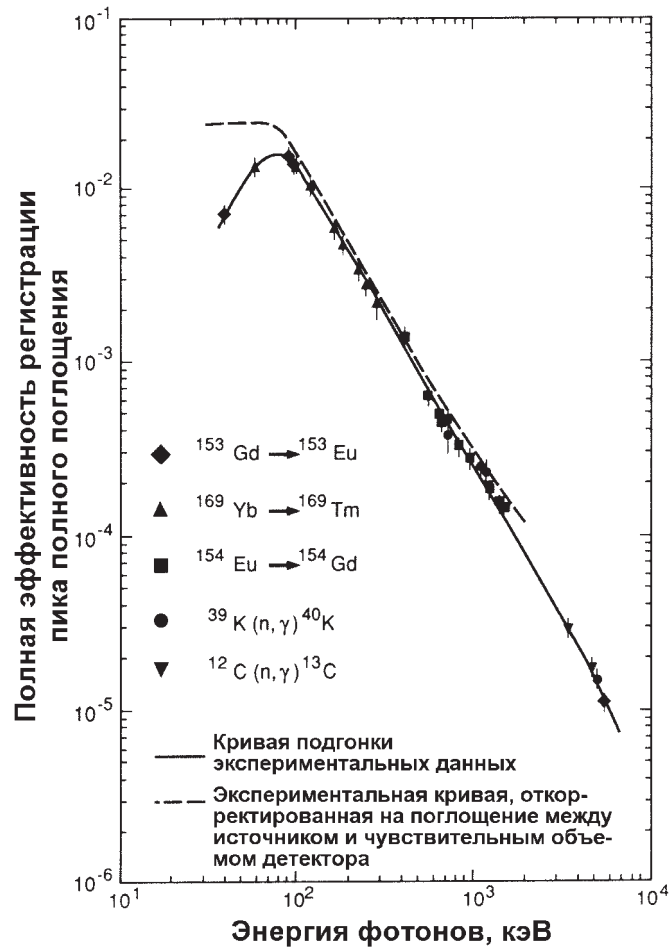


Рис. 3.10. Полная эффективность регистрации пика полного поглощения для точечного источника на расстоянии 54 мм от поверхности планарного детектора Ge(Li) диаметром 33 мм и толщиной 6,8 мм (переделано из [15]). Данные измерений получены от процессов спонтанного и вынужденного гамма-распада. Снижение эффективности в области низких энергий иллюстрирует возросшее поглощение падающего низкоэнергетического излучения корпусом детектора и поглотителями ($\epsilon_{\text{погл}}$); снижение эффективности в области высоких энергий иллюстрирует уменьшение скорости взаимодействий в кристалле детектора для гамма-квантов более высоких энергий ($\epsilon_{\text{соств}}$)

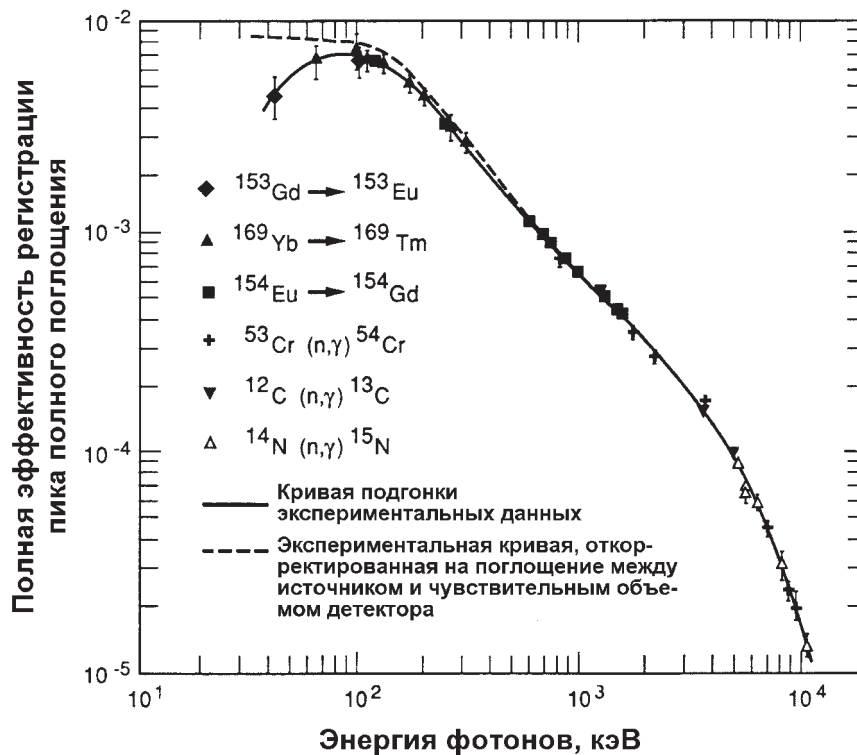


Рис. 3.11. Полная эффективность регистрации пика полного поглощения для точечного источника на расстоянии 83 мм от поверхности истинного коаксиального детектора Ge(Li) объемом 38 см³ (переделано из [15]). Интерпретация аналогична рис. 3.10

3.4 ВЫБОР ДЕТЕКТОРА

НРА имеет различные цели, которые могут диктовать выбор разных детекторов. Обсуждение выбора детекторов с точки зрения энергетического разрешения дано в главе 4. Дополнительным фактором выбора является рассматриваемый с точки зрения практического применения энергетический диапазон гамма-излучения (или рентгеновского излучения). Вообще, основные рассматриваемые энергии фотонов в НРА ядерных материалов находятся в диапазоне от низкой рентгеновской области (85-100 кэВ) до приблизительно 400 кэВ. Исключениями являются плотнометрия по L_{III}-краю в области энергий от 15 до 30 кэВ (см. главу 9), измерения изотопного состава плутония в области от 400 до 1000 кэВ (см. главу 8) и редкие измерения активности дочерних продуктов ²³⁸U в области от 600 до 1000 кэВ. Основные характеристики гамма-излучений ядерных материалов приведены в табл. 1.2. Как было показано выше, толстые (по оси) детекторы являются более эффективными для измерения высоких энергий, а для измерений низкоэнергетических квантов гамма- и рентгеновского излучения лучше подходят тонкие (по оси) детекторы, благодаря их оптимальной эффективности регистрации при низких и средних энергиях и относительной нечувствительности к излу-

чению с более высокой энергией. Другие факторы, такие как стоимость и портативность, могут диктовать использование менее дорогих и более миниатюрных сцинтилляционных детекторов NaI с сопутствующей потерей хорошего энергетического разрешения. В последние годы стали доступны детекторы высокого разрешения с небольшими сосудами Дьюара с жидким азотом, что позволяет уменьшить размеры детектирующей системы до размеров детекторов NaI. Однако стоимостные соображения все еще заставляют отдавать предпочтение сцинтилляционному детектору перед детектором высокого разрешения.

ЛИТЕРАТУРА

1. G.F. Knoll, *Radiation Detection and Measurement* (John Wiley & Sons, Inc., New York, 1979).
2. F. Adams and R. Dams, *Applied Gamma-Ray Spectrometry* (Pergamon Press, New York, 1975).
3. C.E. Moss, E.J. Dowdy, and M.C. Lucas, "Bismuth Germanate Scintillators: Applications in Nuclear Safeguards and Health Physics", *Nuclear Instruments and Methods A242*, 480 (1986).
4. P.E. Koehler, S.A. Wender, and J.S. Kapustinsky, "Improvements in the Energy Resolution and High-Count-Rate Performance of Bismuth Germanate", *Nuclear Instruments and Methods A242*, 369 (1986).
5. J.B. Birks, *The Theory and Practice of Scintillation Counting* (Pergamon Press, Oxford, 1964).
6. H.W. Cramer, C. Chasman, and K.W. Jones, "Effects Produced by Fast Neutron Bombardment of Ge(Li) Gamma-Ray Detectors", *Nuclear Instruments and Methods* 62, 173 (1968).
7. P.H. Stelson, J.K. Dickens, S. Raman, and R.C. Trammell, "Deterioration of Large Ge(Li) Diodes Caused by Fast Neutrons," *Nuclear Instruments and Methods* 98, 481 (1972).
8. R. Baader, W. Patzner, and H. Wohlfarth, "Regeneration of Neutron-Damaged Ge(Li) Detectors Inside the Cryostat," *Nuclear Instruments and Methods* 117, 609 (1974).
9. R.H. Pehl, "Germanium Gamma-Ray Detectors," *Physics Today* 30, 50 (Nov., 1977).
10. J.M. Marler and V.L. Gelezunas, "Operational Characteristics of High-Purity Germanium Photon Spectrometers Cooled by a Closed-Cycle Cryogenic Refrigerator," *IEEE Transactions on Nuclear Science* NS 20, 522 (1973).
11. E. Sakai, "Present Status of Room-Temperature Semiconductor Detectors," *Nuclear Instruments and Methods* 196, 121 (1982).
12. P. Siffert et al., "Cadmium Telluride Nuclear Radiation Detectors," *IEEE Transactions on Nuclear Science* NS 22, 211 (1975).
13. U. Fano, "On the Theory of Ionization Yield of Radiation in Different Substances," *Physics Review* 70, 44 (1946); "Ionization Yield of Radiation II: The Fluctuations in the Number of Ions," *Physics Review* 72, 26 (1947).

14. A.F. Muggleton, "Semiconductor X-Ray Spectrometers," *Nuclear Instruments and Methods* 101, 113 (1972).
15. H. Seyfarth, A.M. Hassan, B. Hrastnik, P. Goettel, and W. Delang, "Efficiency Determination for some Standard Type Ge(Li) Detectors for Gamma Rays in the Energy Range from 0,04 to 11 MeV," *Nuclear Instruments and Methods* 105, 301 (1972).

Глава 4

Аппаратура для гамма-спектрометрии

Джек Л. Паркер
(Переводчик В. В. Свиридова)

4.1 ВВЕДЕНИЕ

Данная глава описывает назначение и работу отдельных составляющих гамма-спектрометрической системы. В главе 3 было показано, что амплитуда выходного импульса для большинства детекторов гамма-излучения пропорциональна энергии, которая потеряна в них гамма-излучением. Амплитудно-импульсный спектр для таких детекторов содержит серии пиков полного поглощения, расположенных на непрерывном комптоновском распределении. Хотя спектр может быть достаточно сложным (например, см. рис. 1.10 в главе 1) и поэтому трудным для анализа, он содержит много полезной информации о значениях энергии и относительной интенсивности гамма-квантов, испущенных источником. Информация, которая важна для количественного неразрушающего анализа (НРА) ядерных материалов, содержится в пиках полного поглощения. Назначением электронных устройств, которые следуют за детектором, является обеспечение точного представления амплитудно-импульсного спектра и выделение из этого спектра требуемой информации об энергии и интенсивности гамма-излучения.

В этой главе приводится краткое описание различной аппаратуры, используемой в гамма-спектрометрии ядерных материалов, описываются функции каждой составляющей аппаратуры и дается информация о наиболее важных аспектах ее работы. Более подробное описание работы приборов читатель может найти в инструкции по эксплуатации, которая поставляется с каждым прибором. Вследствие быстрой модернизации современного гамма-спектрометрического оборудования, наилучшим источником свежей информации об измерительных приборах являются их производители и пользователи. Хотя изготовители приборов — наилучшие источники информации об электронных возможностях своей аппаратуры, пользователи гамма-спектрометров для НРА обычно являются наилучшим источником информации по эффективным методикам анализа и выбору аппаратуры для конкретного применения. Книги и статьи по гамма-спектрометрической аппаратуре пользуются большим спросом и обычно исчезают из продажи вскоре после опубликования.

Гамма-спектрометрические системы могут быть разделены на два класса в соответствии с типом используемого анализатора: одноканального анализатора (ОКА) или многоканального анализатора (МКА). На рис. 4.1 и 4.2 показаны блок-схемы систем этих двух классов. Обе системы начинаются с детектора, в котором взаимодействие гамма-излучения с веществом приводит к образованию слабого электрического сигнала, пропорционального потерянной энергии. Раздел 4.2 посвящен процессу выбора соответствующего детектора для различных применений НРА. В разделах с 4.3 по 4.8 описываются основные составляющие

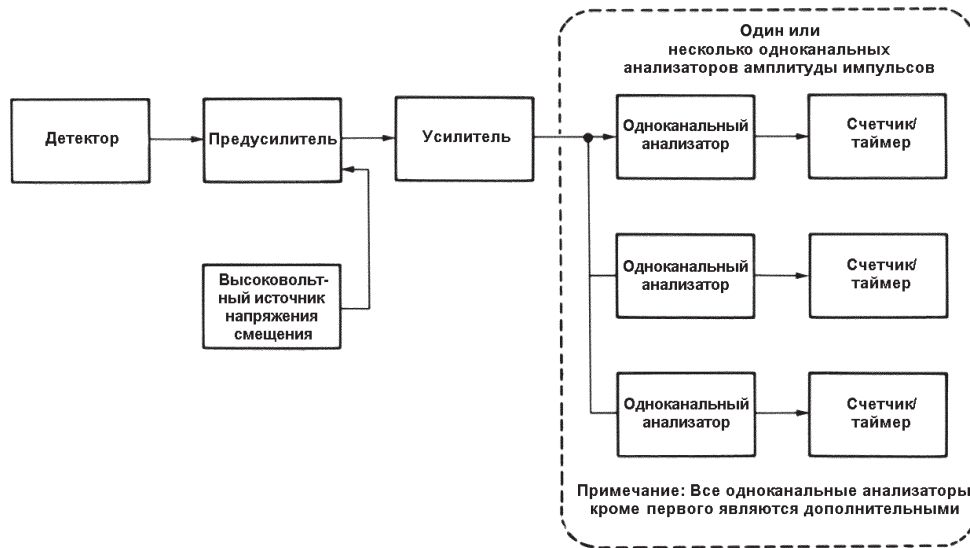


Рис. 4.1. Блок-схема гамма-спектрометрической системы, основанной на одноканальных анализаторах, для простых случаев НРА

гамма-спектрометрических систем; рассмотрение каждой составной части системы происходит в порядке, в котором электрический сигнал проходит через измерительную систему. В разделе 4.9 представлена вспомогательная электронная аппаратура. Чтобы скомпоновать работоспособную систему НРА, обычно необходимо добавить составляющие, отличные от тех, которые показаны на рис. 4.1 или рис. 4.2. В последующих главах, в которых представлены конкретные методики анализа и аппаратура, описаны защитные экраны, коллиматоры, держатели и манипуляторы образца, сканирующие механизмы и заслонки источника.

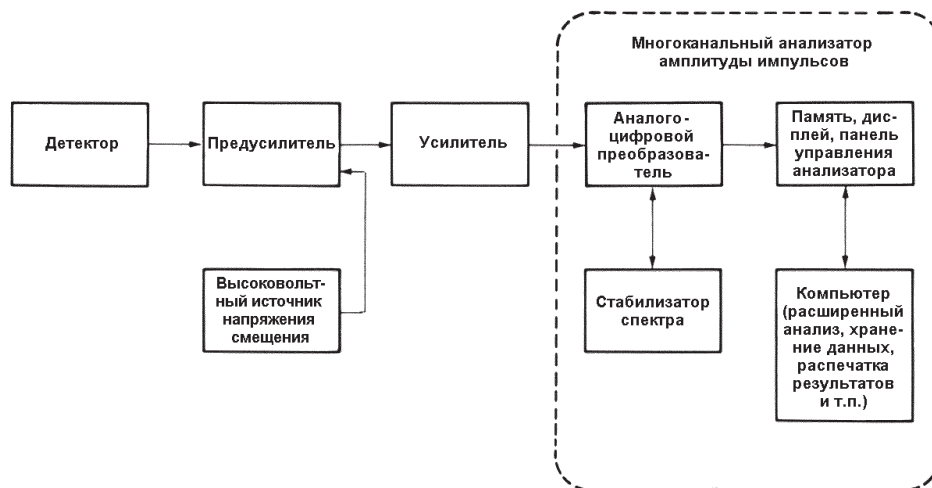


Рис. 4.2. Блок-схема гамма-спектрометрической системы на базе многоканального анализатора для сложных случаев НРА

4.2 ВЫБОР ДЕТЕКТОРА

В этом разделе даны некоторые основные рекомендации по осуществлению трудной операции выбора подходящего детектора для конкретного применения НРА. Для детектора существует несметное количество вариаций размеров, формы, конфигурации внешнего оформления, эксплуатационных характеристик и цены. Выбор детектора должен проводиться с учетом технических требований, которые определяются условиями применения, а также не технических, но часто решающих требований, определяемых бюджетными ограничениями.

Первым и самым важным параметром, который должен быть рассмотрен, является разрешение детектора. Детектор с высоким разрешением обычно дает более точные результаты анализа, чем детектор с низким разрешением. Разрешение германиевого детектора, как правило, находится в диапазоне от 0,5 до 2,0 кэВ для энергий, представляющих интерес для НРА, в то время как разрешение детекторов NaI находится в диапазоне от 20 до 60 кэВ. Легче точно определить площадь пика полного поглощения в сложном спектре, когда пики не перекрываются, а вероятность перекрытия меньше для более узких пиков. Непрерывный фон под пиком полного поглощения легче вычистить из спектра с высоким разрешением, поскольку фон в этом случае является меньшей частью от общей интенсивности в области пика. Площади пиков полного поглощения также легче вычислить в спектрах с высоким разрешением, поскольку уменьшается интерференция от комптоновского рассеяния на малые углы. Гамма-кванты, которые подверглись рассеянию на малые углы, теряют лишь небольшое количество энергии. Если эти рассеянные гамма-кванты все еще попадают в область пика полного поглощения, вычисленная площадь пика полного поглощения, вероятно, будет неправильной. Эту проблему можно минимизировать, используя детектор высокого разрешения, который дает узкие пики полного поглощения.

Сложность спектра оказывает влияние на выбор детектора; чем сложнее анализируемый спектр, тем более желательным становится высокое разрешение. Плутоний имеет намного более сложный спектр, чем уран, поэтому для анализа плутония значительно чаще используются германиевые или кремниевые детекторы, чем для анализа урана.

Вторым параметром, который следует учитывать при выборе детектора, является его эффективность, определяющая ожидаемую скорость счета, время измерения, необходимое для достижения заданной точности, и чувствительность, которая может быть достигнута. Стоимость конкретного типа детектора тем выше, чем выше его эффективность, но заданную эффективность в детекторе NaI низкого разрешения дешевле получить, чем в германиевом детекторе высокого разрешения. Существуют веские причины использования менее дорогого детектора с меньшим разрешением, если он может обеспечить удовлетворительные результаты анализа.

Должны учитываться и другие требования, такие как размеры детектора, требования к его охлаждению и портативности, которые иногда бывают доминирующими. Выбор подходящего детектора часто затруднен и может привести к необходимости болезненного компромисса между противоречивыми требованиями. После того, как выбор сделан, следует уделить особое внимание подготовке для предполагаемого продавца полного перечня необходимых параметров, чтобы гарантировать получение нужного детектора.

4.3 ВЫСОКОВОЛЬТНЫЕ ИСТОЧНИКИ НАПРЯЖЕНИЯ СМЕЩЕНИЯ

Обычно все используемые детекторы гамма-излучения требуют высоковольтных источников напряжения смещения для создания электрического поля, в котором собирается заряд, образованный при взаимодействии гамма-излучения в детекторе. Источник напряжения смещения не является составляющей системы, через которую проходит сигнал, но необходим для работы детектора. Он обычно является самой надежной составляющей в спектрометрической системе и самой легкой в реализации.

Германиевые и кремниевые диодные детекторы требуют очень низких значений токов, обычно $< 10^{-9}$ А. Требуемое напряжение изменяется в диапазоне от сотен вольт для небольших кремниевых детекторов до нескольких тысяч вольт для больших коаксиальных германиевых детекторов. Источник напряжения смещения для германиевых и кремниевых детекторов обычно обеспечивает до 5 кВ и 100 мкА. Требования к напряжению и низкочастотному фильтрованию не жесткие, поскольку в детекторе отсутствует усиление заряда. Обычно напряжение можно непрерывно изменять в диапазоне от 0 до 5 кВ. Раньше при включении детектора или замене источника напряжения смещения необходимо было изменять напряжение очень медленно (< 100 В/с), поскольку полевой транзистор, используемый в первом каскаде предусилителя, легко повреждался при внезапном скачке напряжения. Однако сейчас защита, создаваемая фильтром, включенным во все высококачественные предусилители, настолько хороша, что полевой транзистор редко выходит из строя по этой причине. Иногда для создания напряжения смещения для германиевых и кремниевых детекторов используются портативные, не создающие шумов батареи. В качестве "источника питания" в течение нескольких часов может быть использован заряженный конденсатор в высоковольтном фильтре, помещенном в предусилитель, который может обеспечивать работоспособность детектора в течение одного или двух часов.

Требования к напряжению смещения для фотоумножителей (ФЭУ), используемых в сцинтилляционных детекторах, являются более строгими, чем для твердотельных диодных детекторов. Требуемое напряжение обычно составляет несколько тысяч вольт, а требуемый ток обычно находится в диапазоне от 1 до 10 мА. Поскольку коэффициент усиления фотоумножителя сильно зависит от приложенного напряжения, стабильность и фильтрация напряжения должны быть очень высокими. Ток питания, равный 100 мкА, который используется для германиевых детекторов, обычно не подходит для фотоумножителя.

Напряжение смещения обеспечивается различными способами. Наиболее часто используемыми являются модули в стандарте NIM (Nuclear Instrumentation Module), которые вставляются в каркас или "крейт" (NIM-"крейт"), питающий модуль необходимым напряжением постоянного тока. NIM-модули отвечают международным стандартам по размерам, напряжениям, электрической проводке и соединениям и широко используются в аппаратуре НРА. Другие источники напряжения смещения совместимы с NIM-"крейтами", но получают энергию от обычного источника переменного тока. Источники напряжения смещения с высокими значениями тока, используемые для питания цепей фотоумножителей, часто устанавливаются в стандартных каркасах шириной 45,7 см.

Для генерации требуемого напряжения в NIM-источниках напряжения смещения часто используют электронный ключевой преобразователь. Он создает высокочастотную помеху, которая может проникнуть в предусилитель и вызвать значительное ухудшение качества спектра. Эта проблема может быть решена с помощью тщательного заземления и использования экранированного кабеля. Помеха, генерируемая источником питания, может также вызвать ложные сигналы в цепи режекции наложений импульсов детекторов. Источник напряжения смещения фотоумножителя, даже не NIM-типа, может быть источником высокочастотной помехи. Обычно самым полезным помощником для определения наличия мешающей электрической помехи от какого-либо источника является осциллограф.

Заметим, что источники напряжения смещения детектора могут быть смертельно опасными для человека. Необходимо быть внимательным, особенно при работе с источниками с высокими значениями тока, которые подают напряжение на ФЭУ. Сотрудникам, которым обычно приходится работать с низким напряжением, низкой мощностью и транзисторными цепями, необходимо осознавать опасность, связанную с использованием мощных источников питания.

4.4 ПРЕДУСИЛИТЕЛЬ

Для германиевых и кремниевых детекторов требуются предусилители, которые также нужны для улучшения характеристик сцинтилляционных детекторов NaI. Выходной сигнал детектора обычно является коротким по времени импульсом тока с низкой амплитудой; обычный импульс может иметь амплитуду, равную 10 мВ и длительность – 200 нс. Предусилитель преобразует этот импульс тока в импульс напряжения, амплитуда которого пропорциональна энергии, потерянной гамма-излучением в процессе взаимодействия с детектором. Для того чтобы получить максимальное отношение сигнал/шум и сохранить информацию относительно энергии гамма-излучения, предусилитель следует помещать как можно ближе к детектору. Близость предусилителя минимизирует емкость на входе предусилителя, уменьшая этим уровень выходного шума. Предусилитель также служит в качестве устройства, которое согласует высокий импеданс детектора и низкий импеданс коаксиального кабеля, который передает основному усилителю усиленный сигнал детектора. Усилитель и предусилитель могут быть разнесены друг от друга на расстояние в несколько сотен метров.

Так как детектор и предусилитель должны располагаться близко друг к другу, предусилитель часто находится в неудобном месте, окруженном защитой, и недоступен в процессе использования. Большинство предусилителей не имеют внешнего управления; регулировка коэффициента усиления и формы импульса производится основным усилителем, который обычно находится в более удобном месте, близко к другим электронным устройствам системы. Из-за отсутствия внешнего управления, объем предусилителя составляет лишь несколько сотен кубических сантиметров. Когда предусилитель должен быть расположен внутри защиты детектора, его небольшой объем является достоинством. Предусилитель обычно помещают в небольшую прямоугольную коробку. Для одиночных детекторов NaI предусилитель часто встраивают в цилиндрический корпус, который содержит ФЭУ и панель для его включения. В последние годы предусилители



Рис. 4.3. Детекторы, имеющие предусилители кольцевой, цилиндрической и прямоугольной формы

для германиевых и кремниевых детекторов упаковывали в кольцевую конфигурацию за крышкой криостата детектора. Такая конфигурация исключает использование неудобных коробок, которые выступают за криостат, и облегчает экранирование детекторов. На рис. 4.3 показаны основные конфигурации описываемых здесь предусилителей.

Хотя обычно предусилители почти не управляются, они имеют несколько разъемов. Обычно это один или два выходных разъема и один тестовый вход, через который могут подаваться импульсы от электронного генератора импульсов для моделирования гамма-излучения с целью проверки работы предусилителя и других устройств обработки сигнала системы. Смоделированный пик гамма-излучения может дать хорошую оценку электронных потерь в системе (см. главу 5). Часто через вмонтированный в блок предусилителя разъем к детектору прикладывают напряжение смещения. Обычно для обеспечения питания предусилителя используется многостырьковый разъем; питание часто поступает от основного усилителя. Некоторые предусилители для детектора NaI получают необходимое низкое напряжение от источника напряжения смещения детектора.

Выходной импульс предусилителя имеет форму быстро растущей положительной ступеньки, за которой следует медленный спад. Время нарастания импульса равно нескольким десяткам микросекунды, а время спада изменяется от 50 до 100 мкс. Амплитуда быстро растущей ступеньки пропорциональна заряду, переданному на вход предусилителя, и поэтому пропорциональна энергии, потерянной гамма-квантом в детекторе. Длительное время спада приводит к тому, что второй импульс часто поступает до того, как спадет хвост предыдущего импульса. Этот эффект можно увидеть на рис. 4.4, на котором показаны выходные импульсы предусилителя от большого коаксиального германиевого детектора. Амплитуда быстро растущей ступеньки содержит важную информацию об энергии взаимодействия гамма-излучения. Она искажается только при чрезмерно высокой скорости потери энергии в детекторе, когда средний уровень постоянного тока предусилителя возрастает до такого уровня, что некоторые последующие быстро растущие ступеньки выходят за линейный диапазон усилителя.

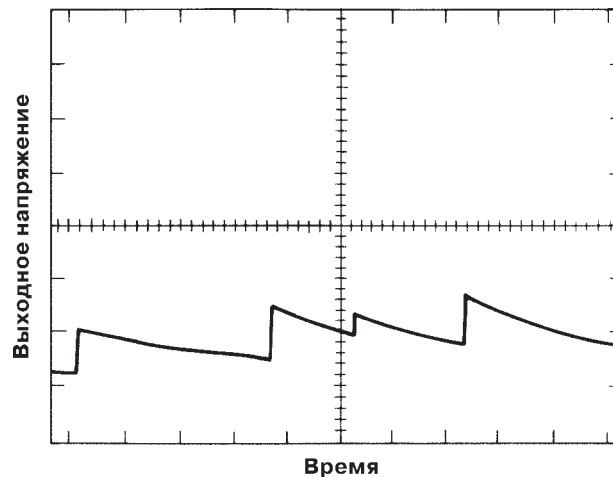


Рис. 4.4. Выходные импульсы типового предусилителя германиевого детектора. Важная энергетическая информация содержится в амплитуде быстро растущей ступеньки напряжения (0,5 мкс). Наложение импульсов на длинных хвостах (50 мкс) не искажает энергетическую информацию

Большинство производителей предлагают несколько моделей предусилителей, которые оптимизированы для различных типов детекторов. Такие параметры, как уровень шума, чувствительность, время нарастания импульса и пропускная способность (максимальная загрузка) могут отличаться для различных моделей. Максимальная загрузка обычно определяется как максимальный заряд в единицу времени (Кл/с), переданный от детектора на вход предусилителя. Для германиевых и кремниевых детекторов часто указывается эквивалентная энергия в единицу времени (МэВ/с). Если это число поделить на среднюю энергию гамма-излучения, получается максимальная скорость счета (или загрузка), с которой может справиться предусилитель.

Обычно можно выбрать всего несколько вариантов предусилителя для детектора NaI. Однако для германиевых детекторов существует несколько значительно отличающихся вариантов, выбор зависит от детектора и задачи измерения. Поскольку германиевые детекторы всегда продаются вместе с интегральным предусилителем, выбор должен быть сделан в момент покупки детектора.

В первом усилительном каскаде предусилителя германиевого детектора всегда применяется полевой транзистор из-за низкого шума. Когда появились первые германиевые детекторы, полевой транзистор работал при комнатной температуре, характерной для всего предусилителя. Однако, если полевой транзистор охлаждается вместе с кристаллом детектора, можно достичь лучшего разрешения. Существенное улучшение разрешения детектора достигается при энергиях ниже 200 кэВ. Сейчас имеются предусилители с полевыми транзисторами, работающими как при комнатной температуре, так и при охлаждении. Резистор обратной связи предусилителя и другие компоненты схемы могут быть расположены внутри криостата вместе с полевым транзистором и кристаллом детектора. Расплата за улучшение эксплуатационных характеристик состоит в том, что если полевой транзистор вышел из строя и должен быть заменен, необходимо вскрыть криостат, что обычно делается только производителем и обходится дорого для пользователя. Тем не менее, предусилители, которые используют охлаждаемые полевые транзисторы, сейчас настолько надежны и так хорошо защищены от высоковольтных помех, что транзисторы чрезвычайно редко выходят из строя. В результате, этот тип предусилителя сейчас является наиболее распространенным.

Большинство производителей предлагают также высоко- и низкоскоростные варианты предусилителей. Эти варианты необходимы, поскольку нельзя оптимизировать разрешение детектора для высокой и низкой скоростей счета одновременно. Большинство детекторно-предусилительных блоков оптимизируются для работы при низкой скорости счета (< 10000 имп./с), поскольку это обеспечивает наилучшее разрешение. Если предполагается, что скорости счета будут превышать 50000 имп./с, от производителей надо потребовать оптимизации детектора для высоких скоростей счета.

Кристаллы германиевого детектора выполняются в планарной и коаксиальной геометриях; обозначение указывает на форму кристалла и расположение контактов, собирающих заряд. Небольшие планарные детекторы (< 10 см³) благодаря своей очень низкой электрической емкости, имеют шум ниже и разрешение лучше, чем большие детекторы. Чтобы получить наилучшее разрешение от небольших планарных детекторов, из предусилителя иногда удаляют резистор обратной связи. Однако без него время спада выходного импульса очень велико, и уровень выходного напряжения растет с каждым последующим импульсом. На рис. 4.5 показан сигнал на выходе предусилителя, который не имеет резистора обратной связи. При достижении максимально возможного уровня постоянного тока, предусилитель должен быть восстановлен с использованием импульсно-оптического или транзисторного методов. Однако импульс переустановки может насытить основной усилитель на несколько сотен микросекунд, и в этом случае спектрометр должен быть отключен, чтобы не анализировать неправильные импульсы. Из-за этих сложностей импульсно-оптические предусилители выбираются только тогда, когда абсолютно необходимо небольшое улучшение в разрешении. Импульсно-оптические предусилители имеют низкую пропускную способность, чаще только на уровне 5000 МэВ/с и не больше уровня 50000 МэВ/с,

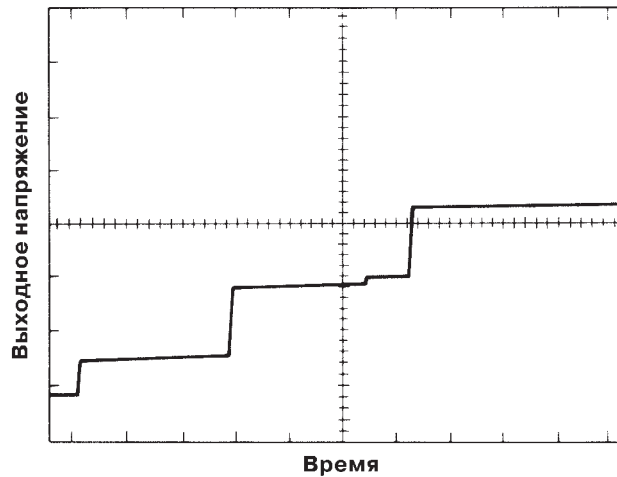


Рис. 4.5. Выходные импульсы от импульсно-оптического предусилителя германиевого детектора. Из-за отсутствия резистора обратной связи уровень шума ниже, чем у предусилителей с резистором, и выходной уровень постоянного тока растет ступеньками и должен переустанавливаться при достижении максимально возможного напряжения

который обычно обеспечивается другими типами предусилителей. Для гамма-излучения низких энергий (от < 100 до 200 кэВ) ограничение максимальной загрузки обычно не является проблемой.

В последние годы для работы при высоких скоростях счета были разработаны предусилители, которые используют модификации импульсно-оптического метода. В некоторых случаях оптическая связь заменяется транзисторной схемой. В других случаях восстановление осуществляется оптическими средствами, но предусилитель восстанавливается почти после каждого события, снижая тем самым время насыщения усилителя.

4.5 УСИЛИТЕЛЬ

После предусилителя импульсы от гамма-излучения усиливаются и формируются так, чтобы удовлетворить требованиям анализатора амплитуд импульсов, который располагается за основным усилителем. Большинство спектрометрических усилителей являются модулями NIM одинарной или двойной ширины. Портативные многоканальные анализаторы часто имеют встроенный усилитель, который может подойти для намеченных целей.

Основной усилитель получает импульс низкого напряжения от предусилителя и усиливает его в линейном диапазоне напряжений, который для большинства усилителей находится в диапазоне от 0 до 10 В. В линейном диапазоне все входные импульсы усиливаются с одним и тем же коэффициентом. Усилитель не линеен для выходных импульсов, амплитуда которых превышает 10 В. Максимальное выходное напряжение или напряжение насыщения большинства усилителей приблизительно равно 12 В. Коэффициент усиления может быть установлен в широком диапазоне, как правило, от 10 до 5000 . Усилитель обычно имеет два типа

управления усилением (грубое и тонкое), чтобы обеспечить непрерывную регулировку коэффициента усиления.

Функция формирования основного усилителя жизненно важна для получения высококачественных спектров. Усиленные импульсы преобразуются по форме, чтобы оптимизировать отношение сигнал/шум и удовлетворить требованиям амплитудно-импульсного анализатора. Поскольку одноканальные и многоканальные анализаторы измеряют амплитуду входного импульса по отношению к внутреннему эталонному напряжению, выход усилителя между импульсами гамма-излучения должен быстро возвращаться к стабильному уровню напряжения, обычно равному нулю. Стабильность базового уровня напряжения чрезвычайно важна, поскольку любое его отклонение искажает измерение амплитуды импульса гамма-излучения и вносит вклад в уширение пика полного поглощения.

Узкая форма импульса позволяет быстро вернуться к базовому уровню. Однако импульс должен быть достаточно широким, чтобы было достаточно времени для сбора всего заряда, освобожденного в результате взаимодействия гамма-излучения в детекторе. На рис. 4.4 показано, что интервал времени от 0,25 до 0,5 мкс может быть достаточен для полного сбора заряда. Форма импульса должна также обеспечивать такое отношение сигнал/шум, которое минимизирует отклонение амплитуды выходного импульса для данного количества заряда, поданного на вход предусилителя. К сожалению, ширина импульса, которая обеспечивает оптимальное отношение сигнал/шум, обычно больше требуемой для быстрого возврата на базовый уровень. При низкой скорости счета импульс может быть широким, поскольку мала вероятность того, что второй импульс поступит до того, как выход усилителя возвратится к базовому уровню. Однако, когда скорость счета увеличивается, возрастает вероятность того, что импульсы придут на возмущенный базовый уровень, и спектр исказится, несмотря на оптимальное отношение сигнал/шум. Более узкая ширина импульса, чем это требуется для оптимизации отношения сигнал/шум, дает обычно наилучшее разрешение при высоких скоростях счета; однако разрешение не так хорошо, как может быть получено при низких скоростях счета.

В усилителях, используемых с германиевыми и кремниевыми детекторами высокого разрешения, для получения требуемой формы импульса применяют операции электронного дифференцирования, интегрирования и активной фильтрации. Дифференцирование удаляет низкие частоты из сигнала, а интегрирование удаляет высокие частоты. Дифференцирование и интегрирование характеризуются постоянной времени, обычно составляющей единицы микросекунд, которая определяет степень ослабления сигнала как функцию частоты. Чем больше постоянная времени, тем сильнее ослабление низких частот дифференцированием и ослабление высоких частот интегрированием. Когда используются и дифференцирование, и интегрирование, низко- и высокочастотные составляющие сильно подавляются, и усиливается относительно узкая полоса средних частот. Большинство спектрометрических усилителей действуют наилучшим образом, когда постоянные времени дифференцирования и интегрирования равны. Поэтому выбирают постоянные времени в диапазоне от 0,25 до 12 мкс. Когда две постоянные времени равны, выходной импульс усилителя почти симметричен (см. рис. 4.6). Полная ширина импульса составляет приблизительно шесть постоянных времени. При низкой скорости счета большие коаксиальные германиевые детекторы обычно имеют оптимальное разрешение при использовании постоянных времени

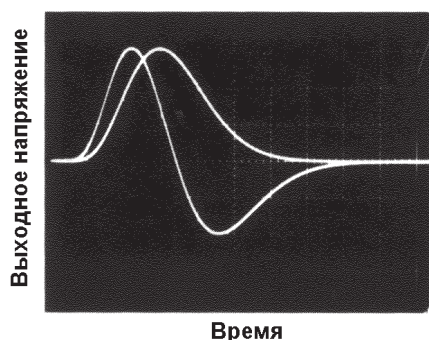


Рис. 4.6. Однополярный и биполярный выходные сигналы типового спектрометрического усилителя с дифференциальным и интегральным формированием импульса

от 3 до 4 мкс. Небольшие планарные германиевые детекторы имеют наилучшее разрешение при постоянных времени от 6 до 8 мкс, а небольшие планарные кремниевые детекторы действуют лучше всего при значениях постоянных времени от 8 до 12 мкс. Проблема наложения импульсов становится более серьезной, когда для получения лучшего разрешения для небольших детекторов используются большие постоянные времени. Постоянная времени, используемая в конкретной ситуации, выбирается в зависимости от типа детектора, ожидаемой скорости счета и от того, какое требование является наиболее важным: к разрешению или к скорости счета.

Германиевые и кремниевые детекторы высокого разрешения являются относительно медленными и требуют больших постоянных времени, чем другие типы детекторов. Сцинтилляционные детекторы NaI, которые имеют разрешение в 10–20 раз хуже чем разрешение германиевых детекторов, работают хорошо при постоянных времени от 0,25 до 1,0 мкс. Органические сцинтилляционные детекторы, которые практически не имеют энергетического разрешения, могут работать только при постоянных времени 0,01 мкс. Когда требования к энергетическому разрешению не существенны, но имеется высокая загрузка, такие детекторы очень полезны. К сожалению, в настоящее время нет детектора, который имеет одновременно очень высокое разрешение при очень высокой загрузке.

Спектрометрические усилители обычно дают две различные формы выходного импульса: однополярную и биполярную. Биполярный обычно получается при дифференцировании однополярного импульса. На рис. 4.6 показаны однополярный и биполярный выходные сигналы типового спектрометрического усилителя. Однополярный выходной сигнал имеет наилучшее отношение сигнал/шум и обычно используется для анализа энергии, в то время как биполярный выходной сигнал обеспечивает наилучшую временную информацию и способность к восстановлению от перегрузки. Форма биполярного импульса обычно лучше подходит для задач по отсчету времени, потому, что точка пересечения нуля (точка, где биполярный импульс изменяет знак) определяется достаточно легко и очень стабильна. Точка пересечения соответствует пику однополярного импульса и почти не зависит от амплитуды выходного импульса.

В схемах формирования импульса могут быть использованы линии задержки. Формирование с использованием линий задержки может давать однополярные или биполярные сигналы в зависимости от того, используются одна или две линии задержки. Усилители с линией задержки экономичны и обладают характеристиками, отвечающими всем требованиям при использовании детекторов низ-

кого разрешения; они редко используются с германиевыми и кремниевыми детекторами, поскольку уровень шума этих усилителей выше уровня шума в усилителях, использующих дифференцирование и интегрирование. Форма выходного импульса усилителя с линией задержки заметно отличается от формы импульса усилителей с дифференцированием и интегрированием. На рис. 4.7 показаны однополярный и биполярный выходные сигналы от типового усилителя с линией задержки.

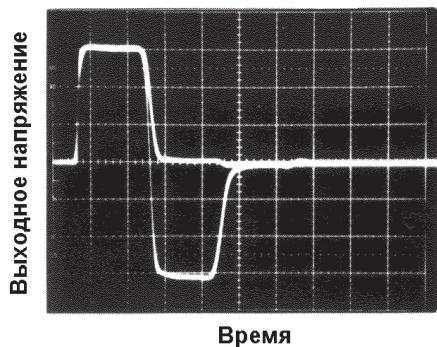


Рис. 4.7. Однополярный и биполярный выходные сигналы усилителя с формированием импульса с помощью линии задержки

4.5.1 Схема "полюс-ноль"

Чтобы обеспечить стабильность базового уровня, большинство усилителей содержит схему "полюс-ноль", которая была введена приблизительно в 1967 г. и являлась, после появления транзисторов, первым главным усовершенствованием в конструкции усилителей. Она существенно улучшает характеристики усилителя при высоких скоростях счета. Термин "полюс-ноль" происходит от терминологии методов преобразования Лапласа, используемых для решения простого дифференциального уравнения, описывающего поведение электрической схемы. Схема очень проста: она состоит из регулируемого резистора, подсоединяемого параллельно входному сопротивлению усилителя. Несмотря на простоту схемы, точность ее регулировки чрезвычайно важна для правильной работы большинства современных усилителей. Когда схема "полюс-ноль" отрегулирована должным образом, выход усилителя возвращается к базовому уровню за минимально возможное время. Когда схема настроена неправильно, получаются следующие результаты. За выходными импульсами следует длительный "недолет" или "перелет", которые искажают выходной базовый уровень и значительно ухудшают характеристики усилителя при высоких скоростях счета. Как следствие, пики полного поглощения расширяются и часто имеют низко- и высокоэнергетические хвосты, в зависимости от того, имеется "недолет" или "перелет". В этом случае точное определение площади пика полного поглощения затруднено. На рис. 4.8 показаны формы импульсов усилителя и пика полного поглощения, которые соответствуют правильной и неправильной регулировкам схемы "полюс-ноль".

Регулировка схемы "полюс-ноль" проста и наилучшим образом производится с помощью осциллографа, который используется для контроля формы выходного импульса усилителя и последующих процедур, приводимых в инструкции к

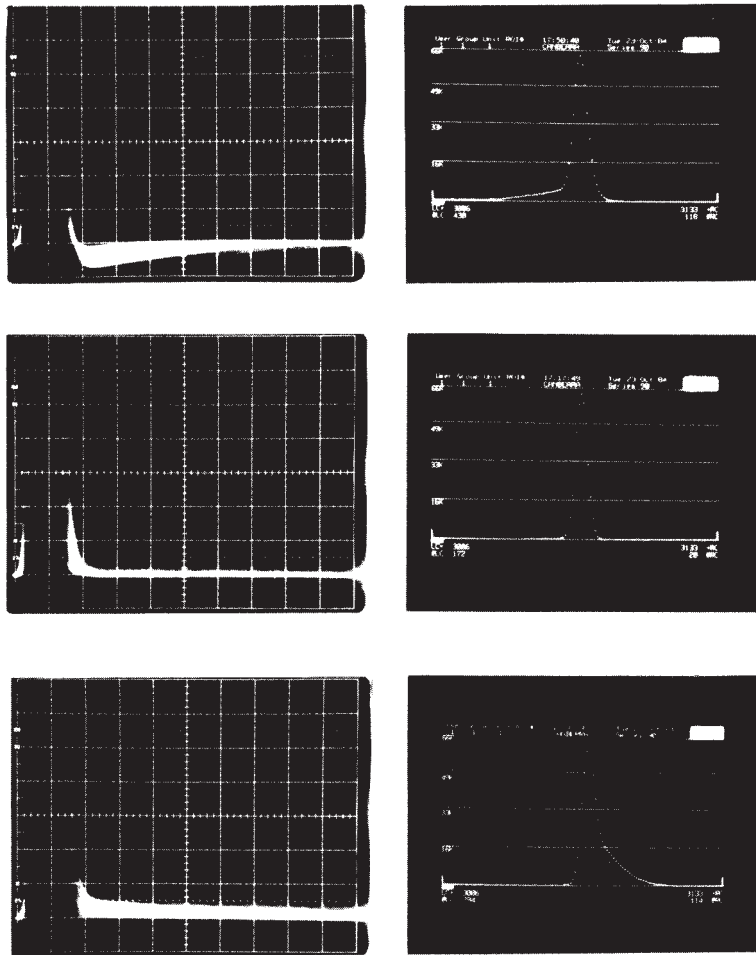


Рис. 4.8. Эффект регулировки схемы "полос-ноль" на выходе усилителя (слева) и форма пика полного поглощения (справа). Верхние рисунки показывают недокомпенсацию схемы "полос-ноль", которая вызывает "недолет" усилителя и затягивание "хвоста" на низкоэнергетической стороне пика МКА. Средние рисунки показывают правильную компенсацию схемы "полос-ноль". Нижние рисунки показывают перекомпенсацию схемы "полос-ноль", которая вызывает "перелет" усилителя и затягивание "хвоста" на высокоэнергетической стороне пика МКА

усилителю. Регулировку следует проверять всякий раз, когда изменяют постоянную времени усилителя.

4.5.2 Цепь восстановления базового уровня

Цепи восстановления базового уровня (ВБУ) были добавлены в спектрометрические усилители вскоре после введения схем "полос-ноль". Подобно схеме "полос-ноль", цепь ВБУ помогает поддерживать стабильный базовый уровень. Схема "полос-ноль" расположена на входе усилителя и является очень простой;

цепь ВБУ расположена на выходе усилителя и часто довольно сложна. Схема "плюс-ноль" предохраняет от "недолета", обусловленного конечным временем спада выходного импульса предусилителя; цепь ВБУ подавляет дрейф базового уровня, вызванный сложением однополярных выходных импульсов переменного тока. Хотя в некоторых усилителях цепь ВБУ действует автоматически, другие усилители имеют цепь управления для оптимизации рабочих характеристик усилителя для различных скоростей счета и различных типов предусилителей. Оптимальная установка параметров цепи ВБУ часто определяется методом проб и ошибок.

4.5.3 Цепь режекции наложений

Цепи режекции наложений были добавлены во многие наиболее совершенные усилители для улучшения их характеристик при высоких скоростях счета. Режектор наложений использует временной цикл для обнаружения и отсеивания событий перекрытия двух или более импульсов от гамма-излучения. Такие события дают объединенную амплитуду импульса, которая не является характеристикой какого-либо одного гамма-кванта, а только увеличивает высоту уровня фона в полученном спектре. На рис. 4.9 показано, как перекрываются два импульса гамма-излучения, и образуется наложение импульсов. Для германиевых детекторов минимальное расстояние между импульсами, которое может быть разрешено режектором наложений, приблизительно равно 0,5 мкс. Режектор наложений обычно дает логический импульс, который может быть использован для режекции наложений. В случаях высоких скоростей счета режектор наложений может дать лучшее разрешение и более низкий уровень фона; в результате упрощается определение площадей пиков полного поглощения. На рис. 4.10 показано улучшение качества спектра, которое может быть достигнуто при использовании режектора наложений. На рисунке также показано, что режектор наложений может привести к обострению формы суммарных пиков таким образом, что они могут быть ошибочно приняты за реальные пики полного поглощения.

Режекция наложений достигается за счет усложнения работы и более жестких требований к выходному импульсу предусилителя, который должен быть свободен от высокочастотного сигнала, вызывающего ложные признаки наложения во временных цепях. Он также должен быть свободен от высокочастотных помех источников питания, пересчетных приборов, компьютеров и видеотерминалов. Такой высокочастотный сигнал обычно отфильтровывается в основном

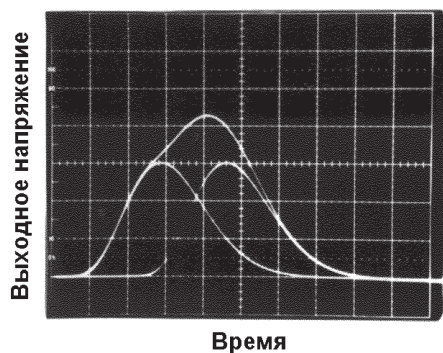


Рис. 4.9. Природа и эффект наложения импульсов на выходе усилителя спектрометра. Когда два импульса разделены друг от друга меньше, чем на время нарастания напряжения усилителя, амплитуда результирующего импульса не характеризует ни один из входных импульсов

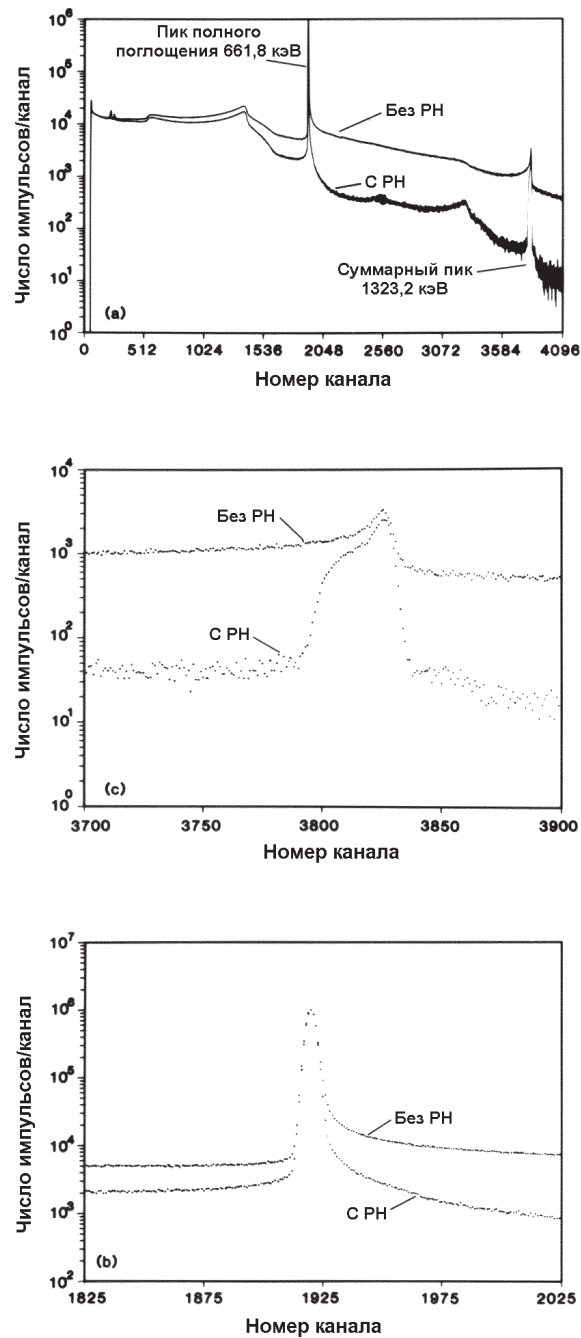


Рис. 4.10. Спектр изотопа ^{137}Cs , полученный при высокой скорости счета (50000 имп./с), демонстрирующий улучшенное качество спектра при использовании режекции наложений (РН). Сверху: весь спектр. Посередине: пик полного поглощения при 661,6 кэВ. Внизу: суммарный пик при 1323,2 кэВ; режекция наложения уменьшает континуум наложений в окрестности суммарного пика в 25 раз, но не приводит к значительному снижению амплитуды суммарного пика

усилителе, но может вызвать ложные признаки наложения в цепи режекции и привести к чрезмерной режекции импульсов гамма-излучения и искажениям спектра. Значительное внимание должно быть уделено настройке цепей режекции наложений.

Правильное использование схемы "полос-ноль", цепей восстановления базового уровня и режекции наложений может значительно улучшить качество измеренного спектра гамма-излучения. Так как осциллограф крайне необходим для установки оптимальных характеристик этих цепей, каждому пользователю гамма-спектрометрической системы следует иметь хороший осциллограф. Пользователям следует понимать работу осциллографа так же хорошо, как работу спектрометрической системы. Они скорее могут обнаружить и предотвратить различные проблемы путем правильного использования осциллографа, чем при применении какого-либо другого оборудования.

4.5.4 Усовершенствование схемы усилителей

Два последних усовершенствования схемы усилителей улучшают способность гамма-спектрометрических систем работать при высоких нагрузках без чрезмерного ухудшения спектра. Обе идеи используют узкую форму импульса для снижения потерь от наложений с одновременным сохранением хорошей формы пика, отношения сигнал/шум и разрешения.

В одной из схем на выходе стандартного высококачественного усилителя добавляется запирающий интегратор. Амплитуда выходного импульса интегратора пропорциональна интегралу выходных импульсов усилителя. Выходной сигнал интегратора преобразуется в цифровой код с помощью аналогово-цифрового преобразователя. Для конкретного типа взаимодействия гамма-излучения время сбора заряда зависит от напряжения электрического поля в детекторе и места взаимодействия. Носители заряда, которые образуются далеко от собирающих электродов или в областях, где электрическое поле слабее, достигают электродов позднее. Заряд, который собирается очень поздно, может не дать вклада в часть импульса предусилителя, несущую информацию; вероятно такой заряд вызывает баллистический дефицит. Если постоянные времени усилителя сравнимы со временем сбора заряда, интеграл выходных импульсов усилителя в большей степени пропорционален собранному заряду, чем амплитуда импульса. Если оценивать качественно, то интегратор позволяет увеличить период сбора заряда и уменьшает баллистический дефицит. С комбинацией усилитель-интегратор могут использоваться меньшие значения постоянных времени, чем в случае одного усилителя. Малые постоянные времени уменьшают потери при наложении импульсов и увеличивают пропускную способность. На рис. 4.11 показаны выходные импульсы усилителя и соответствующего интегратора.

Во второй схеме вместо обычных дифференциально-интегральных фильтров используются временные фильтры. Методика требует специальных предусилителей и аналогово-цифровых преобразователей, она действует при таких высоких нагрузках, как 10^6 имп./с, при номинальной пропускной способности 80000 имп./с. На рис. 4.12 показано, что форма выходного импульса этой системы существенно отличается от формы импульса привычной функции Гаусса.

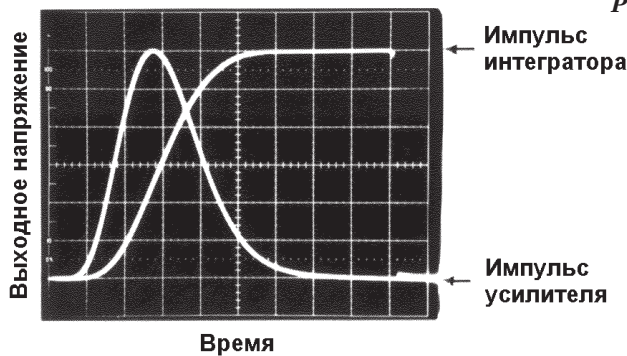


Рис. 4.11. Обычный выходной сигнал и выходной сигнал запирающего интегратора от усилителя, который использует запирающий интегратор для уменьшения баллистического дефицита при малых постоянных времени. Запирающий интегратор улучшает разрешение, снижает наложения импульсов и потери из-за мертвого времени при высоких скоростях счета на входе

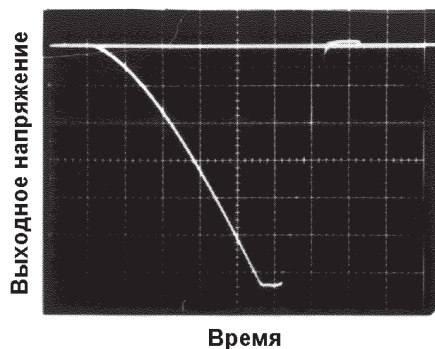


Рис. 4.12. Выходной сигнал импульсного процессора, использующего временные фильтры для формирования выходных импульсов предусилителя

Следует подчеркнуть, что выбор детектора с наилучшим сбором заряда является чрезвычайно важным для спектрометрии высокого разрешения при высоких нагрузках.

4.6 ОДНОКАНАЛЬНЫЙ АНАЛИЗАТОР

Одноканальный анализатор (ОКА) является прибором амплитудно-импульсного анализа. На рис. 4.1 он показан в составе простой спектрометрической системы. Исторически первый амплитудно-импульсный анализирующий прибор представлял собой дискриминатор с одним регулируемым порогом напряжения. Если напряжение выходного импульса усилителя превышает порог дискриминатора, дискриминатор выдает логический импульс, который используется для счета и осуществления функций контроля и имеет фиксированную амплитуду и ширину, в спектрометрической аппаратуре обычно равные 5 В и 1 мкс, соответственно. Пороговое напряжение калибруется на эквивалентную ему энергию гамма-излучения. Когда выход дискриминатора соединен с пересчетным устройством, то оно считает все гамма-кванты, которые обладают энергией, превышающей порог дискриминации.

ОКА обычно представляет собой два дискриминатора с независимыми порогами. Если амплитуда импульса усилителя превышает нижний порог и меньше верхнего порога, ОКА выдает логический импульс. Если выход ОКА присоединен к пересчетному устройству, то оно будет считать все гамма-кванты в выбран-

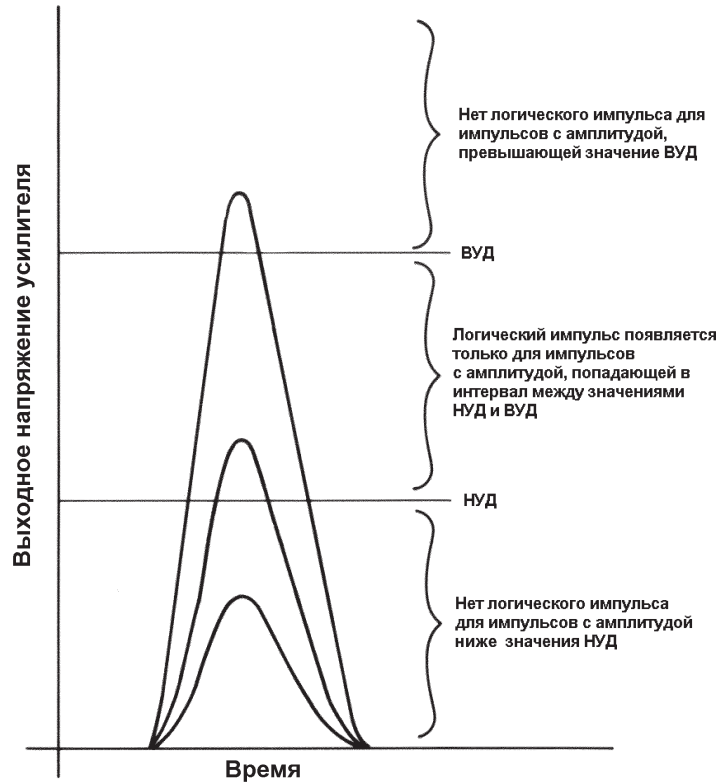


Рис. 4.13. Принципы действия одноканального анализатора (НУД — нижний уровень дискриминации, ВУД — верхний уровень дискриминации)

ном энергетическом диапазоне или канале. На рис. 4.13 проиллюстрировано действие ОКА.

Энергетический спектр гамма-излучения можно измерить, устанавливая узкое энергетическое окно и регистрируя серии отсчетов при последовательном перемещении окна вдоль рассматриваемого энергетического диапазона в виде серии непрерывных и не перекрывающихся энергетических каналов. Этот метод очень продолжителен по времени, когда окно узкое и необходимо зарегистрировать много отсчетов. До появления многоканальных анализаторов (МКА) для измерения спектров гамма-излучения использовались ОКА (см. рис. 4.14). Методику иногда автоматизировали, добавляя механический привод для управления нижним порогом и регистрирующий измеритель скорости отсчетов на выходе ОКА.

Если значение напряжения верхнего порога привязано к значению напряжения нижнего порога, то оба порога ОКА могут привязываться к одному и тому же исходному уровню напряжения, обычно ноль вольт. Окно регистрации можно продвигать по спектру, регулируя только нижний порог. Некоторые ОКА могут действовать как два независимых дискриминатора, как ОКА с независимыми порогами или как только что описанный оконный ОКА. Некоторые ОКА дают информацию только об амплитуде импульса, другие — амплитудно-импульсную и временную информацию. Для установки окна ОКА в требуемом энергетическом

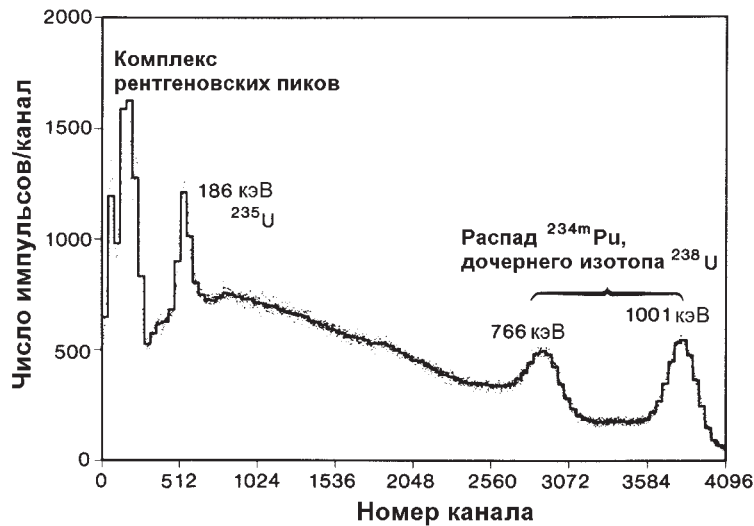


Рис. 4.14. Гамма-спектр высокообогащенного урана, измеренный с помощью высококачественного детектора NaI. Точки показывают 4096-канальный спектр МКА, а гистограмма — 100-канальный спектр ОКА. Общее число отсчетов в обоих спектрах одинаково; следовательно, точность отдельной точки в 4096-канальном спектре составляет только одну шестую соответствующей полосы в 100-канальном спектре. Вертикальные шкалы обоих спектров были нормированы

диапазоне могут быть использованы некоторые процедуры, запирая осциллограф или МКА от выходного сигнала ОКА.

4.7 СЧЕТЧИКИ, ПЕРЕСЧЕТНЫЕ УСТРОЙСТВА, ТАЙМЕРЫ И ИЗМЕРИТЕЛИ СКОРОСТИ СЧЕТА

Счетчик/таймер, показанный на рис. 4.1, является самой простой частью спектрометрической системы; его функция заключается в счете выходных логических импульсов ОКА.

Термины *счетчик* и *пересчетное устройство* обычно равнозначны. До появления цифровых электронных дисплеев, таких как светодиоды и жидкокристаллические дисплеи, для индикации числа зарегистрированных импульсов использовались электромеханические регистраторы. Однако они были очень медленными и часто им предшествовали электронные цепи, вырабатывающие один логический импульс, соответствующий фиксированному числу входных логических импульсов. Такой "пересчетный" коэффициент обычно является степенью 10. Исторически термин *пересчетное устройство* правильно применять к электронным цепям, которым предшествовали электромеханические регистраторы. Хотя механические регистраторы больше не используют, термин *пересчетное устройство* часто применяют в регистрирующей аппаратуре, которая не имеет функции управления и контроля времени. Термин *счетчик* является более предпочтительным и наглядным. Термин *таймер* обычно применяется к отдельному устройству, которое измеряет время и может включать один или более счетчиков в вы-

бранный временной интервал. В прошлом счетчики и таймеры были обычно отдельными устройствами; сейчас обе функции часто объединяются в одном устройстве, которое можно назвать *счетчик/таймер* или просто *счетчик*. *Измеритель скорости счета* определяет среднюю скорость счета импульсов, поступающих на его вход, и может быть использован вместо или вместе со счетчиком.

Современные счетчики действуют при максимальных нагрузках около 2×10^7 имп./с и могут регистрировать два импульса, интервал времени между которыми составляет почти 50 нс. Большинство счетчиков имеют емкость в шесть десятичных разрядов, однако имеются семи и восьмиразрядные счетчики. Хотя счетчики и таймеры обычно имеют визуальное отображение числа импульсов или секунд, существуют счетчики и без визуального отображения для тех случаев, когда требуется только автоматическое считывание в компьютер или на печать. Многие счетчики выдают логический импульс переполнения для того, чтобы показать превышение емкости счетчика. Некоторые счетчики могут запираются (включаться или выключаться) логическими импульсами от другого управляющего электронного устройства. Бывают варианты счетчиков, которые имеют внутренние дискриминаторы, принтеры и интерфейсы компьютера и могут регистрировать положительные или отрицательные входные импульсы.

Таймеры являются счетчиками, которые считают сигналы генератора импульсов фиксированной частоты для определения требуемого интервала времени. Эталонный сигнал времени приходит либо от сети переменного тока (60 Гц в США, 50 Гц в Европе и России) или от внутреннего кварцевого генератора. Источник частоты, которым является сеть, менее дорог и почти отвечает основным требованиям. Если частота линии переменного тока усредняется в течение дня, точность такого источника частоты достаточно высока. Если должны измеряться интервалы меньше, чем один день, с погрешностью менее 0,1 %, необходимо использовать управляемый кварцевый генератор частоты. Многие комбинации счетчик/таймер могут либо считать в течение заданного времени, либо измерять время, необходимое, чтобы сосчитать заданное число импульсов. Последний режим позволяет получить все измерения с одинаковой статистической погрешностью.

В прошлом все измерители скорости счета представляли собой аналоговые устройства, которые давали токовый сигнал, пропорциональный средней скорости счета. Сигнал, соответствующий скорости счета, отображался на измерительном приборе и мог быть передан самописцу через внешний разъем. Все измерители скорости счета имели набор постоянных времени для выбора быстрого отклика прибора при изменении скорости счета. Имелись линейные и логарифмические шкалы, и некоторые приборы издавали звуковой сигнал, если скорость счета превышала заданный предел. Современные измерители скорости счета могут быть либо аналоговыми, либо цифровыми приборами. Цифровой измеритель скорости счета представляет собой счетчик/таймер, который автоматически проводит счет и повторяет цикл измерений; время счета часто устанавливается равным 1 с, чтобы цифровой дисплей показывал число отсчетов за секунду. Визуальное табло цифрового измерителя скорости счета считывается лучше, чем стрелочный индикатор аналогового измерителя скорости счета. Цифровой измеритель скорости счета часто используется для измерения полной скорости поступления импульсов гамма-излучения с усилителя. Поскольку полная скорость счета ока-

зывает значительное влияние на характеристики системы, скорость счета часто контролируется непрерывно.

4.8 МНОГОКАНАЛЬНЫЙ АНАЛИЗАТОР

Функции, которые на рис. 4.2 представлены внутри пунктирной линии, обычно выполняются многоканальным анализатором (МКА), действующим по принципу амплитудно-импульсного анализа. Термины многоканальный анализатор и амплитудно-импульсный анализатор часто взаимозаменяемы. МКА может работать в нескольких режимах, включая анализ амплитуды импульсов, выбор уровней напряжения и многоканальное масштабирование. Он сортирует и накапливает импульсы от зарегистрированных гамма-квантов, поступающие от основного усилителя, для построения цифрового и визуального представления амплитудно-импульсного спектра, полученного с помощью детектора.

4.8.1 Аналого-цифровой преобразователь

Аналого-цифровой преобразователь (АЦП) расположен на входе МКА и производит основной анализ амплитуды импульсов. На вход АЦП подается аналоговый импульс напряжения от главного усилителя; на его выходе появляется двоичное число, которое пропорционально амплитуде входного импульса. Двоичное число на выходе часто называют адресом. Другие цепи МКА добавляют единицу в регистр памяти МКА, адрес которого соответствует адресу АЦП, который выполняет функцию, аналогичную той, которую выполняет пользователь осциллографа, произносящий "пять вольт", когда на входную клемму осциллографа поступает импульс в 5 В. АЦП принимает импульсы в заданном диапазоне напряжения, обычно от 0 до 8 или до 10 В, и сортирует их по большому ряду прилегающих друг к другу ячеек или каналов напряжения равной ширины. Из-за функции сортировки первые МКА часто называли "сортировщиками" всплесков, так как импульс усилителя сравнивался с электрическим всплеском.

Число каналов, на которое делится весь диапазон напряжений, обычно является степенью числа 2 и называется коэффициентом преобразования АЦП. В середине 1950-х годов высококачественные АЦП делили 10 В на 256 каналов. Сейчас АЦП обычно делит 10 В на 16384 каналов. Эта способность впечатляет; отдельный канал имеет ширину всего 0,6 мВ. Требуемый коэффициент преобразования АЦП изменяется в зависимости от типа детектора и рассматриваемого диапазона энергии. На рис. 4.15 показана часть 8192-канального спектра плутония, измеренного с помощью германиевого детектора высокого разрешения. Пики полного поглощения должны содержать достаточное число каналов, чтобы точно описать структуру спектра. В некоторых случаях вполне достаточно пяти каналов. Когда требуется процедура подгонки пика, для точного определения формы пика необходимы 10 или более каналов.

АЦП сортирует выходные импульсы усилителя в соответствии с уровнем их напряжения, который пропорционален энергии, потерянной гамма-квантом в детекторе. Подобно соотношению между напряжением импульса и энергией гам-

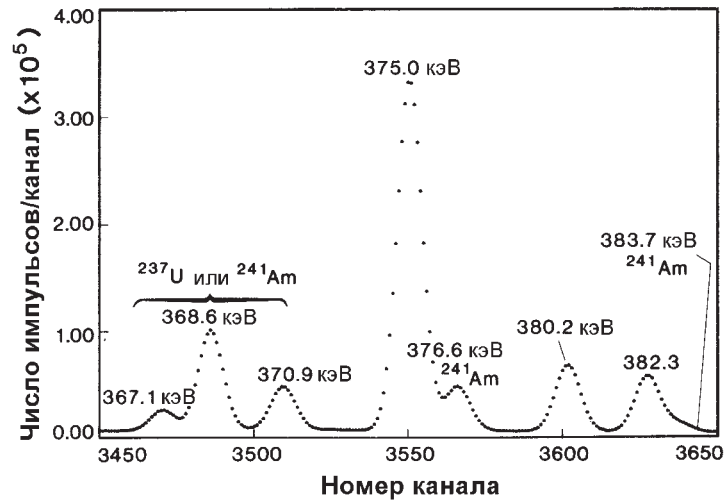


Рис. 4.15. Небольшая часть 8192-канального спектра плутония, полученного с помощью высококачественного коаксиального германиевого детектора. Главным пиком является пик 375 кэВ от распада ²³⁹Pu

ма-кванта отношение между номером канала и энергией гамма-кванта приблизительно линейно. Это соотношение можно представить уравнением (4.1):

$$E = mX + bE, \quad (4.1)$$

где: E — энергия, кэВ;

X — номер канала;

m — наклон прямой, кэВ/канал;

b — точка пересечения прямой с осью X , кэВ.

Наклон m зависит от коэффициента преобразования энергии гамма-кванта в заряд детектора и коэффициента усиления усилителя; обычно значения этого коэффициента изменяются от 0,05 до 1,0 кэВ/канал. Хотя логично предположить, что нулевая энергия соответствует нулевому каналу ($b=0$), часто это не так. Точка пересечения оси X и наклон прямой могут быть отрегулированы таким образом, чтобы подогнуть рассматриваемый энергетический диапазон в нужный диапазон каналов. Например, при измерении плутония часто используют гамма-излучение в диапазоне от 60 до 420 кэВ. Если наклон установлен равным 0,1 кэВ/канал, а точка пересечения нуля находится на 20 кэВ, 4096-канальный спектр перекрывает энергетический диапазон от 20 до 429,6 кэВ и включает рассматриваемое гамма-излучение с энергией 413,7 кэВ. В этом примере номер канала легко может быть преобразован в энергию. Большинство АЦП имеют как аналоговое, так и цифровое управление для регулировки точки пересечения оси X . Аналоговое управление называется управлением базового уровня или нуля, а цифровое управление называется цифровым компенсатором.

Поскольку предусилители, усилители и аналогово-цифровые преобразователи не являются абсолютно линейными устройствами, соотношение между энергией и номером канала, показанное в уравнении (4.1), не является точным. Однако при хорошем оборудовании энергия гамма-излучения может быть измерена с точностью до десятых долей кэВ, предполагая линейную зависимость. Линей-

ность АЦП обычно определяют двумя величинами: интегральной и дифференциальной нелинейностями. Интегральная нелинейность характеризуется слабой кривизной в соотношении между энергией и номером канала; дифференциальная нелинейность определяется изменением в ширине канала. Трудно создать АЦП, который не имел бы дифференциальной нелинейности. Часто примыкающие каналы имеют заметно разную ширину. Это можно наблюдать на горизонтальных участках спектра, когда все каналы с четными номерами имеют больше отсчетов, чем все каналы с нечетными номерами. Такие нечетно-четные эффекты общеизвестны и могут проявляться и в чередующихся группах двух, четырех или даже восьми каналов. Общая проблема АЦП, которая может влиять на результаты измерений, заключается в медленном росте дифференциальной нелинейности со временем. Уровень дифференциальной нелинейности обычных АЦП, равный 1%, является вполне приемлемым для большинства задач.

Обычно используются два типа АЦП: АЦП Уилкинсона и АЦП последовательного приближения. АЦП Уилкинсона считает импульсы от быстрого генератора за интервал времени, который пропорционален амплитуде импульса усилителя. Время, преобразованное в код, определяет номер канала, приписываемый каждому импульсу. АЦП последовательного приближения проводит сравнение импульса усилителя в серии аналоговых компараторов. Первый компаратор определяет, находится ли амплитуда импульса выше или ниже половины диапазона АЦП. Каждый последующий компаратор показывает, находится ли импульс выше или ниже половины интервала напряжения предыдущего компаратора. Серия из 12 компараторов приписывает амплитуду анализируемого импульса к одному из 2^{12} (или 4096) каналов. Время, преобразованное в код, для АЦП последовательного приближения является постоянным и не зависит от амплитуды импульса. До недавнего времени АЦП Уилкинсона доминировали в области гамма-спектрометрии, поскольку они имели лучшую дифференциальную линейность. Сейчас АЦП последовательного приближения имеют сравнимую дифференциальную линейность и становятся более популярными, поскольку они работают быстрее, чем АЦП Уилкинсона.

Для спектрометрии при высоких скоростях счета быстродействие АЦП является важным параметром. Когда АЦП обрабатывает один импульс, все другие импульсы игнорируются. Время обработки импульса, или мертвое время, может быть существенной частью общего времени набора данных. Мертвое время, равное 25 %, означает, что в потоке импульсов усилителя теряется 25 % информации. Для обоих типов АЦП мертвое время на одно событие равно сумме времени преобразования амплитуды в код и фиксированного времени обработки (обычно от 2 до 3 мкс). Генераторы с частотами 450 и 100 МГц, используемые в АЦП Уилкинсона, требуют от 12 до 43 мкс на преобразование в число и запись события для гамма-кванта в 4000-й канал. В АЦП последовательного приближения (4096 каналов) на анализ события для одного гамма-кванта требуется от 4 до 12 мкс. Подробное рассмотрение быстродействия АЦП требует анализа энергетического спектра гамма-излучения, общего коэффициента усиления системы и диапазона АЦП. В общем случае для спектров с числом каналов 4096 и более, АЦП последовательного приближения работают быстрее, чем АЦП Уилкинсона, но для спектра с небольшим числом каналов у АЦП Уилкинсона выше скорость работы. В спектре со средним числом каналов, равным 512, АЦП Уилкинсона с частотой 400 МГц имеет среднее мертвое время на событие, равное 3 мкс.

Большинство АЦП, независимо от их типа или изготовителя, имеют несколько общих характеристик. Дискриминаторы нижнего и верхнего уровня определяют наименьший и наибольший импульсы, которые допустимы для цифрового преобразования. Эти дискриминаторы могут быть отрегулированы таким образом, чтобы отбраковывать не представляющие интерес события низких и высоких энергий и снизить мертвое время АЦП. Регулировка дискриминатора не оказывает действия на общую скорость счета гамма-квантов и не может быть использована для снижения потерь из-за наложений импульсов, которые имеют место в детекторе, предусилителе и усилителе. Эти дискриминаторы являются ОКА на входе АЦП. Большинство АЦП снабжены выходным разъемом от ОКА и имеют входы совпадений и антисовпадений, которые позволяют внешним логическим цепям управлять работой АЦП. Цепи режекции наложений импульсов генерируют управляющий импульс, который подается на вход антисовпадений, чтобы запретить обработку или запоминание наложенных импульсов. Вход совпадений также используется для анализа событий гамма-излучения, которые регистрируются в двух отдельных детекторах. Большинство АЦП имеют регулируемые коэффициент и диапазон преобразования; управление диапазоном задает максимальное число преобразуемых каналов. Обычно существует индикатор мертвого времени, который показывает его долю. В МКА на основе компьютеров параметры АЦП часто могут устанавливаться управляющей программой компьютера. Большинство небольших МКА имеют встроенный АЦП. Большие системы МКА используют отдельные модули АЦП в стандарте NIM или встроенные АЦП.

4.8.2 Стабилизаторы спектра

Для германиевых и кремниевых детекторов соотношение энергии и номера канала изменяется со временем даже тогда, когда коэффициент преобразования энергии в собранный заряд постоянен. Коэффициент усиления и нулевой уровень предусилителя, усилителя и АЦП подвержены небольшим, но конечным изменениям, обусловленным отклонениями в температуре и скорости счета. В лабораторных условиях положение пика полного поглощения в 4000-м канале может сместиться только на несколько каналов за период времени в несколько недель; однако даже этот небольшой дрейф может оказаться нежелательным. Большие дрейфы могут внезапно возникнуть в неконтролируемой окружающей среде, что характерно для промышленных установок. В спектрометрической системе для компенсации возможного дрейфа используются электронные модули — стабилизаторы спектра, которые фиксируют положение одного или более пиков полного поглощения при настройке усиления или уровня постоянного тока. Стабилизаторы спектра особенно рекомендуются для гамма-спектрометрических систем, которые должны эксплуатироваться в неконтролируемой окружающей среде неквалифицированными операторами (это часто характерно для обычных систем анализа на заводе). Стабилизаторы также рекомендуются при использовании процедуры суммирования в каналах для определения площадей пиков полного поглощения.

Спектрометрические стабилизаторы, используемые вместе с германиевыми и кремниевыми детекторами, обычно представляют собой цифровые схемы, соединенные непосредственно с АЦП. Стабилизатор рассматривает адрес каждого

гамма-события, генерируемого АЦП, и сохраняет число отсчетов в двух узких окнах на каждой стороне выбранного канала пика полного поглощения. Стабилизатор генерирует сигнал обратной связи для АЦП. Этот сигнал пропорционален разности числа отсчетов в двух окнах. Сигнал обратной связи корректирует коэффициент усиления АЦП и нулевой уровень так, чтобы среднее число отсчетов в каждом окне оставалось одним и тем же; регулировка фиксирует позицию выбранного стабилизационного пика. Часто для стабилизации используются два независимых пика: пик на высокоэнергетическом участке спектра используется для корректировки усиления, а пик на низкоэнергетическом участке спектра — для корректировки нулевого уровня АЦП. Обычно при двухточечной стабилизации стабильность спектрометрической системы настолько высока, что дрейф спектральных пиков не превышает одной десятой части канала в течение многих месяцев. Цифровые стабилизаторы также могут использоваться, чтобы облегчить установку простой и удобной энергетической градуировки (например, $E = 0,1 X$).

Пики стабилизации должны быть свободны от наложений, иметь достаточную интенсивность и присутствовать в течение всего времени анализа. Часто в качестве пика стабилизации используется пик одного из источников гамма-излучения, который прилагается к детектору для градуировки. Обычно такой источник стабилизации является моноэнергетическим и дает пик стабилизации с такой низкой энергией, что его комптоновское распределение не интерферирует с другими рассматриваемыми пиками гамма-излучения. В некоторых случаях к входу предусилителя может быть подсоединен высокостабильный генератор электрических импульсов для получения искусственного пика стабилизации. Пики от генераторов импульсов или специальных источников стабилизации также могут использоваться для обеспечения учета потерь из-за наложений импульсов и мертвого времени (см. главу 5).

Не во всех АЦП имеется цифровая стабилизация, она часто отсутствует в портативных многоканальных анализаторах и АЦП последовательного приближения. Цифровые стабилизаторы являются обычно модулями в стандарте NIM единичной или двойной ширины. Все стабилизаторы имеют ручки управления для установки нужного номера канала центра пика и ширины окон для пиков стабилизации; часто имеется ручка управления для установки чувствительности стабилизатора. Сейчас выпускаются цифровые стабилизаторы, которые могут управляться внешним компьютером; это полезно, когда пики стабилизации необходимо менять в течение автоматизированных процедур анализа.

Цифровые стабилизаторы с малым диапазоном коррекции не работоспособны при использовании детекторов NaI. Кроме того, цифровые стабилизаторы работают с АЦП, а многие системы на основе детектора NaI используют ОКА для накопления необходимой спектрометрической информации. Вследствие относительно большей нестабильности сцинтилляционных детекторов с фотоумножителем (находящейся в диапазоне от 1 до 2 %/°C), для детекторов NaI стабилизация спектра часто более необходима, чем для германиевых или кремниевых детекторов.

Стабилизаторы сцинтилляционных детекторов подобны цифровым стабилизаторам, но работают с усилителем, а не с АЦП. Стабилизатор сравнивает скорость счета на каждой стороне пика, выбранного для стабилизации, и формирует сигнал обратной связи, который подгоняет коэффициент усиления так, чтобы

поддерживать эти две скорости счета равными. Стабилизаторы для детекторов NaI выполняются в виде модулей в стандарте NIM и могут содержать сочетания усилитель/стабилизатор или отдельные стабилизаторы. Когда в спектрах NaI отсутствуют пики, подходящие для стабилизации, в качестве их заменителя нельзя использовать пик от генератора импульсов, потому что он может только корректировать нестабильность предусилителя и усилителя; основной дрейф в системе анализа с детектором NaI связан с фотоумножителем. Хотя внешний источник гамма-излучения дает пик стабилизации, комптоновское распределение от источника может чрезмерно интерферировать с гамма-излучением рассматриваемых энергий. В качестве альтернативного решения можно использовать детектор со встроенным генератором световых импульсов. Кристаллы NaI могут быть выращены с внедрением небольшой примеси ядер, испускающих альфа-частицы (например, ^{241}Am). Взаимодействие альфа-частиц с кристаллом NaI дает четкий пик с фиксированной скоростью счета и энергией, эквивалентной энергии гамма-излучения. Поскольку температурные зависимости сцинтилляции, вызванной альфа-частицами и гамма-излучением, не одинаковы, точная стабилизация для большого температурного диапазона может потребовать специальной цепи температурной компенсации.

4.8.3 Память многоканального анализатора, дисплей и анализ данных

После того как АЦП преобразует импульс напряжения от усилителя в двоичный адрес, этот адрес запоминается для последующего анализа. Все системы МКА имеют память, предназначенную для запоминания спектра, а большинство систем содержат спектральный дисплей и встроенные устройства анализа данных.

Хотя наиболее принятым размером памяти является 4096 каналов, имеются МКА с другими размерами памяти, такими как 1024, 8192 или 16384 канала. Меньший размер памяти обычно используется вместе с детекторами NaI, а также с германиевыми или кремниевыми детекторами при рассмотрении узкого энергетического диапазона. Чтобы иметь достаточное число каналов в пике полного поглощения, обычно требуется общее усиление системы порядка 0,1 кэВ/канал; однако с таким коэффициентом усиления 1024-канальный МКА может собрать данные в диапазоне с шириной до 100 кэВ. Большие системы МКА обычно могут принимать данные от нескольких АЦП одновременно. 16384-канальный МКА может собирать четыре 4096-канальных спектра одновременно. Имеются МКА с большим числом каналов (до 65536).

Максимальное число отсчетов, которое может быть записано в канал, часто является важной характеристикой, поскольку оно устанавливает предел сходимости результатов измерения, который может быть получен при одном измерении. Первые транзисторные МКА часто имели максимальную емкость 65536 отсчетов в канале. Современным стандартом обычно является 10^6 отсчетов в канале, однако, имеются большие МКА с числом отсчетов в канале, равным $1,6 \times 10^7$, $2,56 \times 10^8$ и даже 4×10^9 (последнее число, возможно, больше, чем когда-либо требуется). Хотя действующий стандарт в 10^6 отсчетов в канале подходит для многих задач с низкой скоростью счета, он является определенным ограничением, например, для высокоточных измерений образцов высокой активности. Это ограниче-

ние особенно заметно, когда необходимо измерить в одном спектре слабые и интенсивные пики, как это бывает во многих случаях измерения плутония. Время счета должно быть выбрано таким, чтобы самый интенсивный пик в рассматриваемой области не переполнял емкость канала; к сожалению, это время счета может давать неприемлемо низкие сходимости для определения площадей более слабых пиков. В результате потребуются проведение многократных измерений. Когда решаются вопросы о размере памяти МКА и требования к емкости, особенно внимательно следует рассматривать предполагаемые области применения.

Самый быстрый и полезный путь получения качественной и полуквантитативной информации из спектра, записанного в памяти, это просмотр на графике содержимого канала. Большинство МКА имеют дисплей для отображения спектра, и многие предлагают широкий диапазон возможностей отображения на дисплее. Все дисплеи обладают вертикальными и горизонтальными шкалами, а многие имеют линейные и логарифмические масштабы. Большинство дисплеев имеют один или два курсора, которые могут перемещаться по спектру; номер канала, соответствующего положению курсора, и содержимое этого канала в численном виде отображаются на экране. Большинство МКА могут увеличивать отдельные рассматриваемые области или изменять цвет рассматриваемого диапазона, чтобы выделить конкретные спектральные характеристики. Хороший МКА может показать два или более спектров одновременно, а также наложить спектры для проведения тщательного визуального сравнения.

До недавнего времени в большинстве дисплеев МКА использовались катодно-лучевые трубки с электростатическим отклонением, которое используется только для небольших экранов дисплеев, размером приблизительно 15×15 см. Сейчас большинство МКА используют магнитное отклонение, что позволяет получить больший размер экрана; изображение идентично телевизионному изображению. Некоторые дисплеи многоцветны, но большинство еще монохромны. В каждом типе дисплея канал представлен точкой или полосой, высота которой по вертикали пропорциональна содержимому канала. Жидкокристаллические дисплеи только начали производиться и используются, главным образом, для низкоэнергетических применений в портативных МКА.

Магнито-отклоняющие дисплеи с большими экранами экономичны и дают отличное изображение, но имеют один существенный недостаток. Генератор развертки в цепи магнитного отклонения генерирует импульсы электромагнитной помехи на частотах приблизительно 16 кГц; помеха легко проходит по линиям сигналов предусилителя и может вызвать значительное ухудшение качества спектра. Значительное внимание должно быть уделено заземлению, экранированию и расположению сигнальных кабелей, чтобы исключить или минимизировать эту проблему. Обычно используемые с большими МКА и компьютерными системами видеотерминалы также генерируют подобный шум; все сигнальные кабели должны быть проложены на значительном расстоянии от терминалов.

Большинство крупных МКА имеют несколько встроенных функций для проведения анализа, которые обычно определяют положения пиков и их ширину в числе каналов, проводят энергетическую градуировку, определяют полное число импульсов в выбранном диапазоне, а также площади пиков полного поглощения. Другие имеющиеся функции могут включать сглаживание, нормировку и вычитание фонового спектра. Результаты в численном виде обычно изображаются на экране или печатаются на терминале системы. Указанные функции обеспечива-

ются микропроцессорами, которые выполняют программу, записанную в постоянном запоминающем устройстве (ПЗУ).

Большие МКА часто соединяются с внешним компьютером, который может полностью управлять анализом и выполнять сложные программы анализа. Вычислительная система обычно включает один или более запоминающих устройств, таких как жесткие или гибкие диски, которые обеспечивают хранение спектральных данных и программ анализа. Последним звеном в спектрометрической системе часто является принтер, который дает бумажную копию результатов измерений.

4.9 ВСПОМОГАТЕЛЬНОЕ ЭЛЕКТРОННОЕ ОБОРУДОВАНИЕ

На рис. 4.1 и 4.2 показаны только основные компоненты гамма-спектрометрических систем. В этом разделе описаны другие устройства, которые могут использоваться в дополнение к основным компонентам.

Самым полезным вспомогательным прибором, используемым с гамма-спектрометрическими системами, является осциллограф. Он фактически незаменим при настройке спектрометрической системы на оптимальные эксплуатационные характеристики, для контроля этих характеристик, обнаружения неисправностей или ложных сигналов и корректировки сложных ситуаций. Дорогой осциллограф не требуется; частота 50 МГц, один или два входа по вертикали, обычная временная развертка — вполне достаточны. Портативные осциллографы с питанием от батарей могут быть легко использованы в системах, расположенных в неудобных местах.

Для проверки характеристик системы и корректировки потерь из-за мертвого времени и наложений импульсов используются электронные генераторы импульсов. Ртутные генераторы импульсов отличаются отличной стабильностью амплитуды импульсов, но очень медленны и имеют ограниченную возможность изменения формы импульса. Другие электронные генераторы импульсов часто имеют более высокую частоту и очень широкие возможности изменения формы импульса, но обычно не дают большую амплитуду и не стабильны. Некоторые генераторы импульсов дают случайные интервалы между импульсами, а не обычные фиксированные интервалы. "Скользящие" генераторы импульсов используются для проверки линейности АЦП; амплитуда их импульсов линейно изменяется во времени.

Часто для фотографирования экранов МКА и изображений осциллографа используют фотокамеры. Фотографии формы импульса помогают документировать и диагностировать сложные случаи; фотографии спектров обеспечивают быстрый способ записи информации. Имеются фотокамеры с необходимыми приспособлениями для присоединения их к осциллографу и МКА. Обычно для быстрого получения фотографии используется фотоматериал типа "Полароид".

Существует много различных приборов для получения информации о временных характеристиках импульсов гамма-излучения. Они необходимы, чтобы установить временное соотношение между двумя или большим числом детекторов. Усилители с временными фильтрами для сохранения временной информации проигрывают в соотношении сигнал/шум и общем разрешении. Другие при-

боры анализируют выход предусилителя, биполярный выход основного усилителя или выход усилителя с временным фильтром и генерируют быстрый логический сигнал, который имеет фиксированную и точную временную связь с регистрацией гамма-излучения в детекторе. Временную информацию получают с помощью следующих методик: быстрой дискриминации переднего фронта; выделения постоянной составляющей; компенсации нарастания амплитуды во времени; тщательного определения точки пересечения нуля. Временная информация либо считывается, либо учитывается в схемах совпадения, которые определяют: имели ли место определенные временные соотношения между событиями в двух или более детекторах. В зависимости от типа детектора границы временных ворот совпадений могут сужаться до нескольких наносекунд. Логический выход схемы совпадений либо считывается, либо используется как управляющий сигнал. Когда требуется более подробная временная информация для генерации выходного импульса, амплитуда которого пропорциональна временному интервалу между входными импульсами, может использоваться время-амплитудный преобразователь.

В качестве схемы совпадений или управления на входе в МКА могут быть использованы линейные ворота, которые передают аналоговые сигналы неизменной амплитуды и формы, если они закрываются и открываются управляющими сигналами, которые поступают от одной из цепей синхронизации, описанных выше. Линейный расширитель генерирует импульс той же амплитуды, что и у входного импульса, но регулируемой длины. Расширитель изредка используется для улучшения сигнала усилителя перед последующей обработкой в АЦП. Суммирующие усилители, или микшеры, производят выходные сигналы, которые являются линейной суммой двух или более входных сигналов. Микшер может применяться при наборе спектра от нескольких детекторов и использовании одного АЦП.

Подавление вклада комптоновского распределения является общепринятой процедурой, которая улучшает качество гамма-спектров и использует некоторые цепи синхронизации, описанные выше. Спектрометр, подавляющий комптоновский эффект, обычно включает детектор высокого разрешения, который окружается кольцевым детектором низкого разрешения. Рассеянное гамма-излучение с энергией ниже полной энергии взаимодействия, зарегистрированной в детекторе высокого разрешения, часто регистрируется кольцевым детектором. Совпадение событий в двух детекторах препятствует запоминанию события высокого разрешения в МКА и уменьшает уровень непрерывного комптоновского распределения между пиками полного поглощения.

4.10 ЗАКЛЮЧИТЕЛЬНЫЕ ЗАМЕЧАНИЯ

Аппаратура, описанная в данной главе, может объединяться для формирования гамма-спектрометрических систем для различных задач НРА. Многие производители аппаратуры могут предоставить пользователю полные спектрометрические системы, которые включают все компоненты от детектора до выходного принтера. Если пользователь имеет достаточный опыт, система может быть собрана из отдельных компонентов, поставляемых различными производителями. В любом случае, до выбора спектрометрической системы из почти бесконечной массы

вариантов и конфигураций, необходимо уделить значительное внимание рассмотрению требований, продиктованных будущим применением. В литературе [1-4] приводится детальное описание функций и работы гамма-спектрометрической аппаратуры. Для пользователя, который не является профессионалом в гамма-спектрометрии, данная информация является наилучшей; она получена из исследовательских отчетов, коммерческой литературы, от разработчиков и пользователей современной аппаратуры.

Системы для анализа гамма-излучения, которые предназначены для конкретной задачи, могут быть очень простыми в работе. С другой стороны, большая многосторонность и гибкость обеспечиваются сочетанием соответствующего детектора, усилителя, МКА и возможностями анализа, что в совокупности позволяет сделать большую современную гамма-спектрометрическую систему. К сожалению, сложный и универсальный прибор в действительности никогда не может быть простым в эксплуатации; обычно требуется не менее нескольких недель, чтобы овладеть навыками управления такой большой системой. Однако приложенные усилия приведут к тому, что можно использовать приборы с поистине впечатляющими возможностями. Достижения современных спектрометрических систем наилучшим образом оцениваются теми, кто помнит по собственному опыту то время, когда все спектральные измерения проводились с помощью NaI детекторов, одноканального анализатора и счетчика.

Гамма-спектрометрическое оборудование быстро совершенствовалось за последние 25 лет, когда вакуумные лампы были заменены транзисторами, а транзисторы — интегральными схемами. Микропроцессор обеспечивает большие возможности при меньших объемах. Эффективность системы на доллар стоимости возросла, несмотря на инфляцию. Скорость роста эффективности все еще значительна, особенно в объеме и гибкости памяти МКА, изображении и анализе данных. Качество спектров не прогрессирует так быстро, хотя улучшения в импульсной электронике имеют место, особенно при очень высоких скоростях счета (до 10^6 имп./с) от детекторов высокого разрешения. Технология NaI, германиевых и кремниевых детекторов вполне развита и существенных улучшений пока не ожидается. Будет продолжаться постоянный прогресс во всех областях технологии гамма-спектрометрии, где могут быть неожиданные прорывы.

ЛИТЕРАТУРА

1. G.F. Knoll, *Radiation Detection and Measurement*, second edition (John Wiley & Sons, Inc. New York, 1988).

Эта книга описывает все типы детекторов излучений и соответствующую электронику, включая гамма-спектрометрические системы высокого разрешения. Проводится очень широкое обсуждение с высококачественными объяснениями и многочисленными рисунками. Приводится много математических формул и их выводов, но книга остается легкой для чтения. Это, вероятно, лучшая публикация по гамма-спектрометрическому оборудованию.

2. P. W. Nicholson, *Nuclear Electronics* (John Wiley & Sons, Inc. New York, 1974).

Эта книга является обширным научным трудом по электронике, связанной с детекторами высокого разрешения. Даны подробные описания предусилителей детекторов, формирования импульсов, определения потерь из-за скорости счета, амплитудно-импульсного анализа и разрешения спектров.

3. F. Adams and R. Dams, *Applied Gamma-Ray Spectroscopy* (Pergamon Press, Oxford, 1970).

Хотя это более ранняя работа, чем [1], она дает всестороннее освещение гамма-спектрометрии. Имеется информация о NaI и германиевых детекторах и связанной с ними аппаратуре.

4. W. J. Price, *Nuclear Radiation Detection*, 2nd ed. (McGraw-Hill Book Co., New York, 1964).

Хотя эта книга более старая и более узко направленная, чем три предыдущих, она дает полезные альтернативные описания процесса регистрации и функции электронного оборудования. Она также дает взгляд на детекторы и методы анализа, которые сейчас редко используются, и дает интересный обзор спектрометрического оборудования того времени, когда транзисторы начинали заменять лампы.

Глава 5

Основные вопросы пассивного анализа гамма-излучения

*Дж. Л. Паркер
(Переводчик В.В. Свиридова)*

В этой главе рассматриваются основные вопросы, относящиеся к методикам анализа гамма-излучения, представленным в главах с 7-й по 10-ю включительно. Для получения оптимальных результатов по какой-либо методике анализа пользователю необходимо разобраться в ряде вопросов, которые в первую очередь включают:

- энергетическую градуировку и определение положения пика;
- измерения энергетического разрешения;
- определение площади пика полного поглощения;
- поправки на наложение импульсов и просчеты;
- эффекты закона обратных квадратов;
- измерения эффективности детектора.

5.1 ЭНЕРГЕТИЧЕСКАЯ ГРАДУИРОВКА И ОПРЕДЕЛЕНИЕ ПОЛОЖЕНИЯ ПИКА

5.1.1 Введение

Энергетическая градуировка гамма-спектрометрической системы позволяет получить соотношение между энергией, потерянной гамма-излучением в детекторе, и амплитудой соответствующего выходного импульса усилителя. Амплитуда импульса измеряется либо аналогово-цифровым преобразователем (АЦП) многоканального анализатора (МКА), либо одним или несколькими одноканальными анализаторами (ОКА). Энергетическая градуировка используется для определения ширины и положения рассматриваемых областей (РО), для определения разрешения и значений энергий любых неидентифицированных гамма-квантов.

Энергетическая градуировка хорошей спектрометрической системы приблизительно линейна:

$$E = mx + b, \tag{5.1}$$

где E — энергия, потерянная в детекторе;

m — наклон;

x — амплитуда выходного импульса;

b — пересечение (смещение энергетической шкалы).

Предположение линейности обычно является достаточным для методик неразрушающего анализа (НРА). Однако не существует абсолютно линейных систем, каждая имеет небольшую, но измеримую нелинейность. Когда необходимо получить более точное соотношение, используются полиномы более высоких порядков. Значения энергии гамма-квантов могут определяться с погрешностью от 0,01 до 0,05 кэВ при использовании нелинейной характеристики градуировки и нескольких стандартных источников гамма-излучения с энергиями, известными с погрешностью менее 0,001 кэВ.

Для детекторов низкого разрешения (например, сцинтилляторов NaI(Tl)) часто используют уравнение (5.1) с нулевым значением пересечения ($b = 0$). Обычно линейная аппроксимация является приемлемой даже для задач НРА высокого разрешения. Для хорошего германиевого детектора линейная градуировка будет определять энергию пиков с погрешностью до десятой доли кэВ, что отвечает требованиям определения присутствия изотопа в исследуемом образце. Для большинства изотопов, представляющих интерес для НРА, гамма-спектр настолько специфичен, что для идентификации присутствия изотопов опытному специалисту достаточно визуального просмотра спектра на дисплее МКА. На рис. 5.1 показан характерный спектр плутония низкого выгорания, а на рис. 5.2 представлен характерный спектр урана природного обогащения (0,7 % ^{235}U).

Процедура градуировки включает определение положений пиков известной энергии в каналах и подгонку этих значений к градуировочной функции. Часто для определения энергетической градуировки могут использоваться гамма-кванты от измеряемых образцов ядерных материалов. На рис. 5.1 показано, что спектры плутония имеют свободные от интерференции пики при следующих значениях энергий: 59,54; 129,29; 148,57; 164,57; 208,00; 267,54; 345,01; 375,04 и 413,71 кэВ. Подобные внутренние градуировки возможны для многих нуклидов [1, 2].

Когда измеряемые ядерные материалы не могут обеспечить требуемую внутреннюю градуировку, используются стандарты изотопов, которые испускают гамма-кванты известных энергий. В табл. 5.1 приведен список наиболее часто используемых изотопов, а также значения их периодов полураспада и энергий их основных излучений [3]. Большинство приведенных в списке изотопов испускают только несколько гамма-линий и применимы для детекторов как низкого, так и высокого разрешения. Все изотопы, приведенные в таблице, могут быть приобретены у коммерческих поставщиков. Закрытые источники обычно содержат единственный изотоп и производятся в широком диапазоне форм и размеров. Активности источников от 0,1 до 100 мкКи обычно отвечают требованиям энергетической градуировки. У большинства поставщиков можно приобрести удобные наборы, содержащие от шести до восьми источников отдельных изотопов. Эти источники используются для настройки, тестирования и контроля многих эксплуатационных характеристик спектрометрических систем. Наборы источников полезны для выполнения энергетической градуировки, проверки разрешения и измерения эффективности детектора, регулировки схемы «полос-ноль» и поправки потерь из-за высокой загрузки.

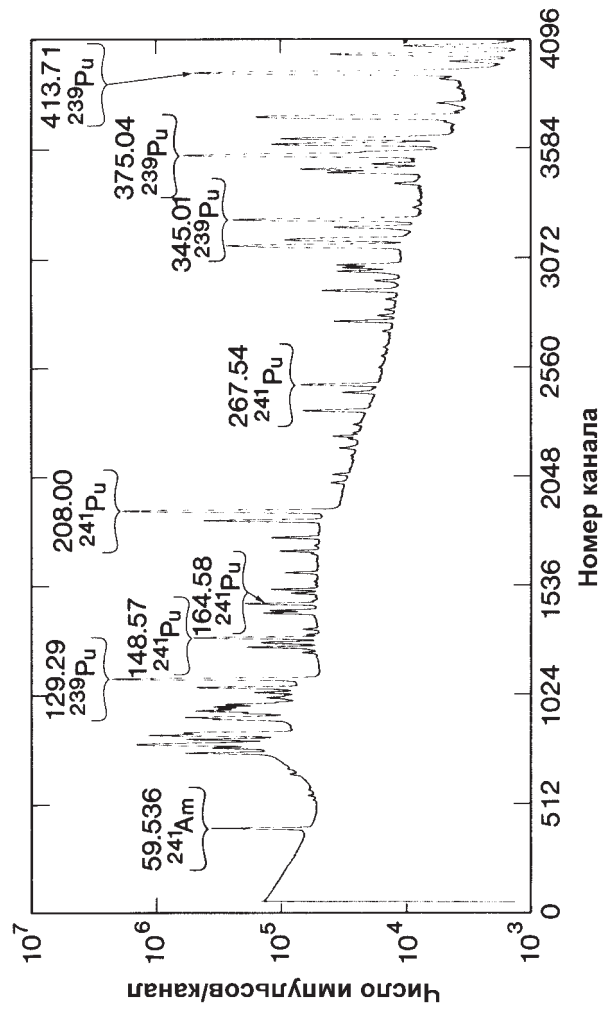


Рис. 5.1. Спектр плутония низкого выгорания, измеренный с помощью детектора высокого разрешения. Обозначенные на рисунке пики используются при энергетической градуировке спектра плутония. Для получения значения энергии в килоэлектронвольтах следует номер канала разделить на 10 и прибавить 20

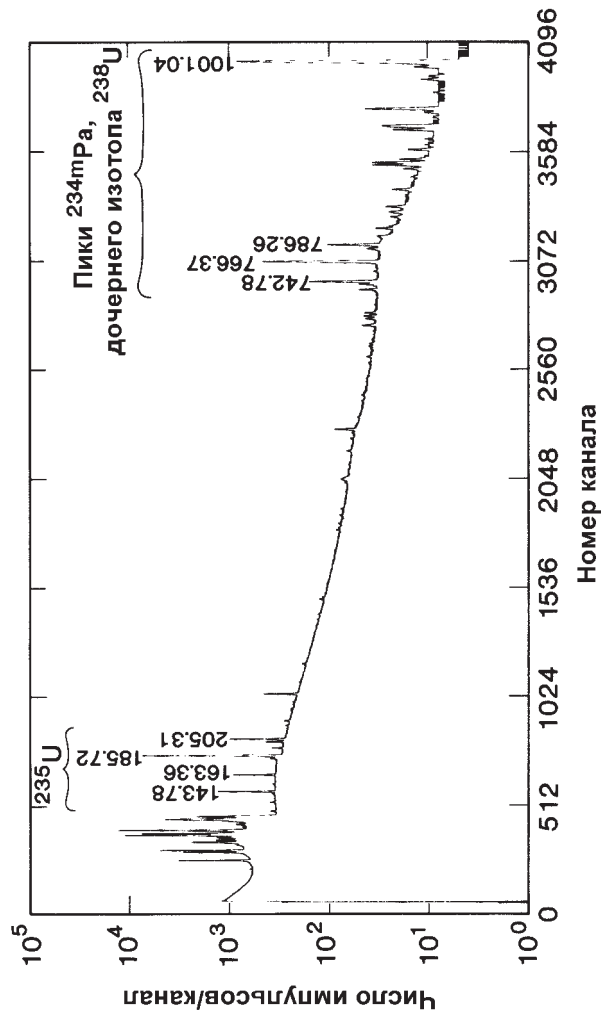


Рис. 5.2. Спектр урана природного обогащения (0,7% ^{235}U), измеренный с помощью детектора высокого разрешения. Для получения значения энергии в килоэлектронвольтах следует номер канала разделить на 4

Таблица 5.1 – Периоды полураспада и энергии основных излучений для отдельных изотопов*

Нуклиды	$T_{1/2}$	Энергия, кэВ	Примечания
^{241}Am	433 г.	59,54	Существует много других гамма-линий, но более слабых – в 10^4 и более раз
^{137}Cs	29,9 г.	661,64	Другим излучением являются К-линии рентгеновского излучения от Ba
^{133}Ba	10,9 г.	81,0; 276,40; 302,85; 356,00; 383,85	Существует несколько других, но намного более слабых гамма-линий
^{60}Co	5,3 г.	1173,23; 1332,51	
^{22}Na	2,8 г.	511,01 1274,51	Аннигиляционное излучение
^{55}Fe	2,7 г.	Рентгеновские лучи К-серии от Mn 5,9; 6,5	Часто используют для градуировки в области низких энергий
^{109}Cd	1,2 г.	88,04	К-линии рентгеновского излучения Ag с энергией 22,16 и 24,9 кэВ
^{54}Mn	312 сут	834,8	Моноэнергетический источник
^{65}Zn	244 сут	511,01 1115,5	Аннигиляционное излучение
^{57}Co	271 сут	122,06; 136,47	Существуют две другие гамма-линии более высокой энергии, но значительно более слабые
^{75}Se	120 сут	121,12; 136,00; 264,65; 279,53; 400,65	Существует несколько других, но значительно более слабых гамма-линий

* Представлены в порядке уменьшения периода полураспада. Все приведенные изотопы можно использовать, по крайней мере, в течение 1 года, так как их периоды полураспада больше 100 дней.

Существуют также стандартные источники гамма-излучения с несколькими изотопами в одной капсуле. Эти многоэнергетические источники используются для определения характеристики энергетической градуировки и характеристики эффективности детекторов высокого разрешения. Источник SRM-4275 Национального бюро стандартов (NBS) содержит ^{125}Sb (период полураспада 2,75 г.), ^{154}Eu (период полураспада 8,49 г.) и ^{155}Eu (период полураспада 4,73 г.) и излучает 18 хорошо разрешенных гамма-линий со значениями энергий, находящимися в интервале между 27 и 1275 кэВ. Интенсивности всех 18 аттестованных гамма-линий хорошо известны с погрешностью менее 1 %.

5.1.2 Линейная энергетическая градуировка

Уравнение (5.1) описывает предполагаемую форму функции для линейной энергетической градуировки. Если известны положения x_1 и x_2 двух пиков полного поглощения, которым соответствуют значения энергий E_1 и E_2 , то m и b могут быть вычислены из следующих выражений:

$$m = \frac{(E_2 - E_1)}{(x_2 - x_1)}, \quad (5.2)$$

$$b = \frac{(x_2 E_1 - x_1 E_2)}{(x_2 - x_1)}. \quad (5.3)$$

Для градуировки по двум точкам, чтобы избежать дальних экстраполяций вне области градуировки, необходимы два градуировочных пика, которые должны располагаться на концах рассматриваемого энергетического диапазона.

Когда проявляется неприемлемая степень нелинейности, могут быть использованы несколько линейных градуировок на более коротких энергетических интервалах. Спектры, измеренные с высоким разрешением, для большинства плутониевых образцов имеют девять хорошо разрешенных пиков в диапазоне энергий между 59,5 и 413,7 кэВ, поэтому можно построить восемь линейных градуировок на интервалах между соседними пиками; протяженность любого интервала не превышает 78 кэВ. Набор линейных градуировок для коротких участков может быть такой же точности, как единственная градуировочная кривая с полиномом второго или более высокого порядка.

Когда в рассматриваемой энергетической области имеется более двух пиков, для подгонки градуировочной линии ко всем пикам может быть использован метод наименьших квадратов. Использование этого метода позволяет определить параметры m и b для n пиков с помощью следующих выражений:

$$m = \frac{n \sum x_i E_i - \sum x_i \sum E_i}{\Delta}, \quad (5.4)$$

$$b = \frac{\sum x_i^2 \sum E_i - \sum x_i \sum x_i E_i}{\Delta}, \quad (5.5)$$

где $\Delta = n \sum x_i^2 - (\sum x_i)^2$.

Линейную подгонку методом наименьших квадратов можно проводить с использованием большинства ручных калькуляторов. Многие системы МКА могут определять x_i и рассчитывать значения m и b для любого выбранного числа пиков. Некоторые системы позволяют выполнять также квадратичную подгонку.

Линейная градуировка обычно удовлетворяет требованиям задач НРА. В табл. 5.2 приводятся результаты линейной градуировки по двум и девяти точкам плутониевого спектра высокого качества. Установкой гамма-линии ^{241}Am 59,536 кэВ на канале 395,0, и гамма-линии ^{239}Pu 413,712 кэВ на канале 3937,0, была получена следующая градуировочная зависимость: E (кэВ) = $0,1x + 20,0$. Во втором столбце табл. 5.2 приведены положения пиков, определенные с помощью подгонки кривой Гаусса к верхней части пиков. В третьем и четвертом столбцах даны разности между общепринятыми значениями энергий и значениями, полученными с помощью градуировок по двум и девяти точкам. Несмотря на то, что существует заметная нелинейность в соотношении между энергией и каналом,

максимальная погрешность градуировки по двум точкам не превышает $\sim 0,03$ кэВ и $\sim 0,017$ кэВ — для градуировки по девяти точкам. Последовательность приведенных в таблице результатов показывает, что положения пиков могут быть определены с погрешностью $\sim 0,1$ канала ($\sim 0,01$ кэВ), и что измеренные и общепринятые значения энергий пиков согласуются с погрешностью $\sim 0,01$ кэВ.

Таблица 5.2 – Результаты линейных энергетических градуировок высококачественного спектра плутония

Общепринятые значения энергии пиков, кэВ	Положения пиков, каналы	Разность значений энергий, кэВ*	
		градуировка по двум точкам	градуировка по девяти точкам
59,536	395,00	---	- 0,017
129,294	1092,77	0,014	- 0,001
148,567	1285,51	0,014	0,000
164,58	1445,80	0,029	+ 0,015
208,000	1879,96	0,022	+ 0,009
267,54	2475,37	0,019	+ 0,007
345,014	3249,98	0,001	- 0,009
375,042	3550,40	0,013	+ 0,004
413,712	3937,00	---	- 0,008

*Приведенные в таблице числа являются разностью значений энергий, полученных при градуировке, и их общепринятых значений. Для градуировки по двум точкам $m = 0,099993$ кэВ/канал, $b = 20,039$ кэВ. Для градуировки по девяти точкам $m = 0,099996$ кэВ/канал, $b = 20,021$ кэВ.

5.1.3 Определение положения пика (центроиды)

Даже для детекторов с высоким разрешением ширина пиков полного поглощения обычно составляет, как минимум, несколько каналов. Пики почти симметричны, и в качестве положения пиков выбираются их центроиды, определенные осью симметрии. Пики полного поглощения обычно хорошо описываются функцией Гаусса следующего вида:

$$y(x) = y_0 \exp[-(x - x_0)^2 / 2\sigma^2], \quad (5.6)$$

где $y(x)$ — число отсчетов в канале x ;

y_0 — амплитуда пика;

x_0 — центроида пика;

σ^2 — дисперсия.

В литературе [4, 5 и 6] приводится подробное объяснение свойств функции Гаусса. Функция Гаусса симметрична относительно точки x_0 , которая является центроидой пика и используется при энергетической градуировке. Параметр y_0 является максимальным значением функции и почти равен максимальному числу отсчетов в канале пика, если фон под ним пренебрежимо мал. Между парамет-

ром σ^2 (дисперсией) и полной шириной на половине высоты FWHM функции Гаусса справедливо следующее соотношение:

$$\text{FWHM} = 2\sqrt{2 \ln 2} \sigma = 2,35482\sigma. \quad (5.7)$$

Площадь под кривой Гаусса определяется выражением

$$A = \sqrt{2\pi} \sigma y_0 = 2,507\sigma y_0 = 1,0645(\text{FWHM})y_0. \quad (5.8)$$

Постоянная в последней части уравнения (5.8) близка к единице, так как площадь кривой Гаусса незначительно превышает площадь равнобедренного треугольника с той же высотой и шириной на уровне половины максимума.

Пики полного поглощения не повторяют точно форму кривой Гаусса. Для германиевых детекторов высокого качества трудно увидеть отклонение от формы кривой Гаусса, но для детекторов низкого качества легко обнаружить эти отклонения в виде избыточного числа отсчетов на низкоэнергетической стороне пика (называемой хвостом). При очень высоких нагрузках или плохо отрегулированном оборудовании иногда видны высокоэнергетические хвосты. Верхняя часть пика, составляющая от половины до двух третей высоты, обычно хорошо описывается кривой Гаусса, а центроида, полученная с помощью подгонки функции Гаусса к верхней части пика, достаточно точно определяет его положение. На рис. 5.3(а), (б) и (в) показан пик полного поглощения ^{60}Co с энергией 1332,5 кэВ и подогнанная функция Гаусса. Рис. 5.3(а) соответствует германиевому детектору высокого качества при низкой скорости счета с правильно отрегулированной электроникой. Отклонения от кривой Гаусса трудно различимы за исключением наличия незначительного низкоэнергетического хвоста. На рис. 5.3(б) представлен спектр, полученный с помощью детектора с плохой формой пика, где хорошо виден низкоэнергетический хвост. На рис. 5.3(в) показан спектр, полученный с помощью того же детектора, что и на рис. 5.3(а), но при очень высоких нагрузках, которые обуславливают наличие отчетливого высокоэнергетического хвоста и значительные отклонения от формы истинной кривой Гаусса. Во всех трех случаях функция Гаусса, которая подгоняется к верхним двум третям пика, позволяет точно определить положение пика.

5.1.4 Визуальное определение положения пика

Человеческий глаз очень хорошо делит пополам симметричные формы. Когда пик может быть выведен на дисплей МКА, оценки положений пиков можно сделать визуально с погрешностью до нескольких десятых долей канала. Перемещаемые маркеры (курсоры), которые имеются у большинства дисплеев МКА, помогают в проведении визуальных определений.

5.1.5 Графическое определение положения пика

На рис. 5.4 показан спектр ^{137}Cs , полученный с помощью высококачественного сцинтиллятора NaI(Tl) с размерами чувствительного объема $\varnothing 7,62 \times 7,62$ см и ОКА. Желательно изображать такие спектры в виде гистограмм с шириной полосы, равной ширине окна, а низкоэнергетическую сторону полосы начинать со значения установленного порогового напряжения. Обычно интервалы между установленными порогами равны ширине окна. Центр пика определяется построени-

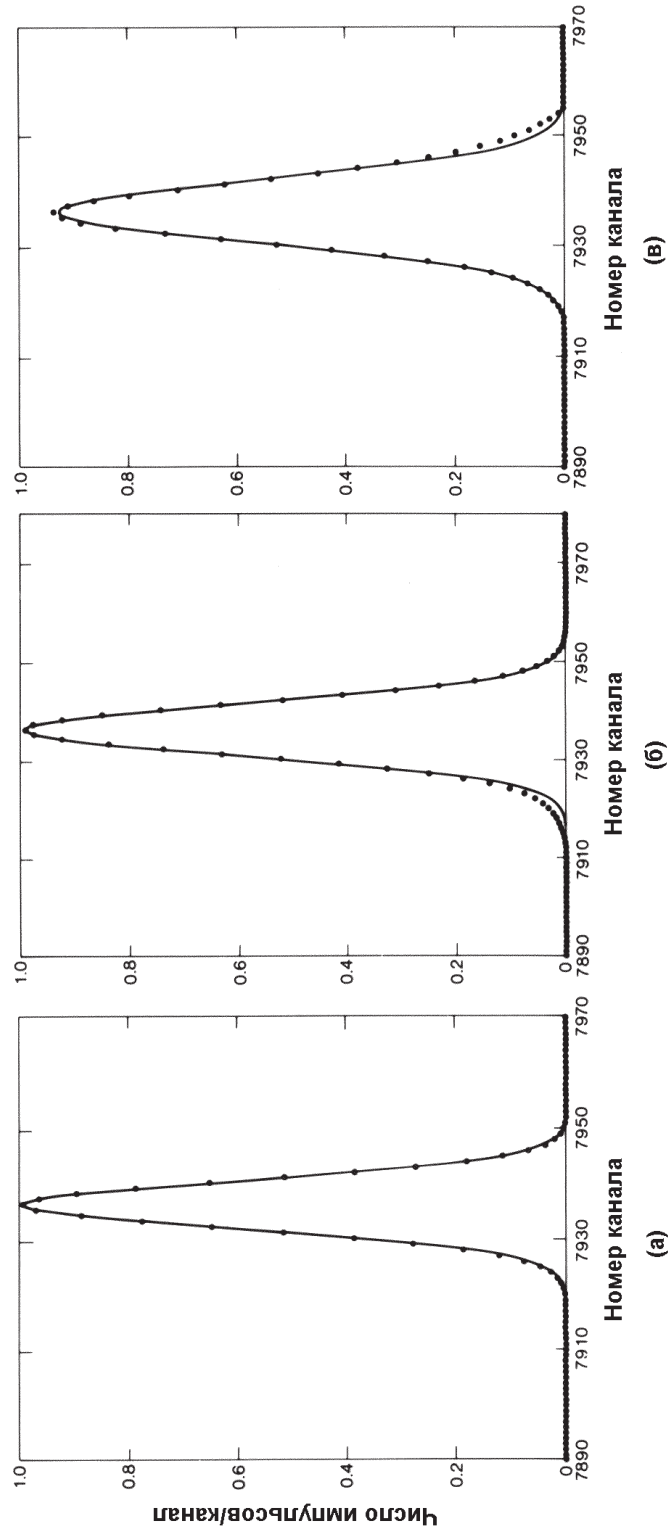


Рис. 5.3. Пик полного поглощения ^{60}Co с энергией 1332,5 кэВ для трех комбинаций детектора и скорости счета: (а) высококачественный германиевый детектор и низкая скорость счета; (б) германиевый детектор с плохой формой пика; (в) высококачественный германиевый детектор и высокая скорость счета. Функция Гаусса подгоняется к верхним двум трем пикам

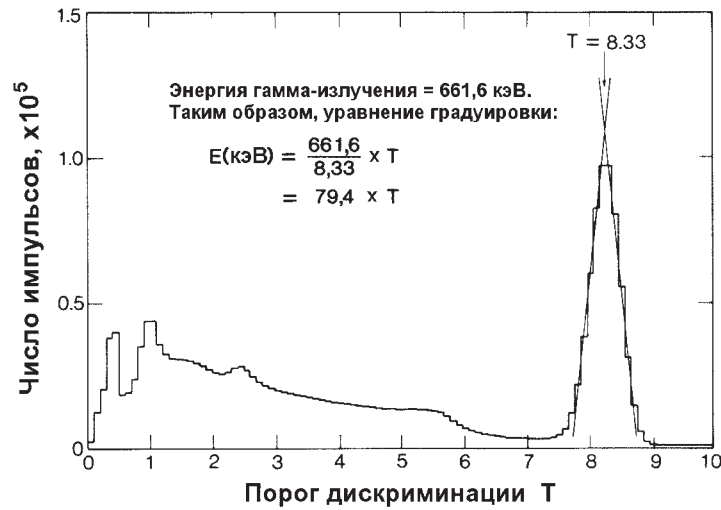


Рис. 5.4. График спектра ^{137}Cs , полученного с помощью сцинтилляционного детектора NaI с чувствительной областью $7,62 \times 7,62$ см и ОКА. График показывает способ оценки центра пика с помощью визуального подбора пересечения линий, которые проходят вдоль сторон пика

ем прямых линий вдоль обеих сторон пика через центры полос. Пересечение двух линий и является центром пика.

5.1.6 Определение положения пика методом первых моментов

Центроида положительной функции $y(x)$ определяется выражением:

$$\bar{x} = \frac{\int_{x_1}^{x_2} x y(x) dx}{\int_{x_1}^{x_2} y(x) dx} \approx \frac{\sum x_i y_i}{\sum y_i}, \quad (5.9)$$

где x_1 и x_2 — границы рассматриваемой площади;

y_i — число отсчетов в канале x_i .

Этот способ называется методом первых моментов потому, что числитель уравнения (5.9) является первым моментом $y(x)$. Для функции Гаусса (уравнение (5.6)) $\bar{x} = x_0$. При вычислениях интегралы заменяются суммами, которые являются хорошим приближением к ним. Функция Гаусса стремится к нулю при $x \rightarrow \pm\infty$; однако суммирование в диапазоне трех FWHM обычно вполне достаточно. Если пик симметричен, а диапазон суммирования симметричен по отношению к пику, даже без вычитания фона под пиком получаются хорошие результаты. Результаты таких вычислений будут ошибочными, если под пиком имеется большой фон, а диапазон суммирования расположен асимметрично. Если фон под пиком вычитается, погрешность в вычислении положения пика, обусловленная асимметрией диапазона суммирования, мала. На рис. 5.5 показаны примеры правильного и неправильного выбора диапазона суммирования. Методы вычитания фона рассматриваются в этой главе далее.

Метод первых моментов особенно полезен для пиков с относительно небольшим числом отсчетов в каналах. Для пиков с явной асимметрией этот метод следу-

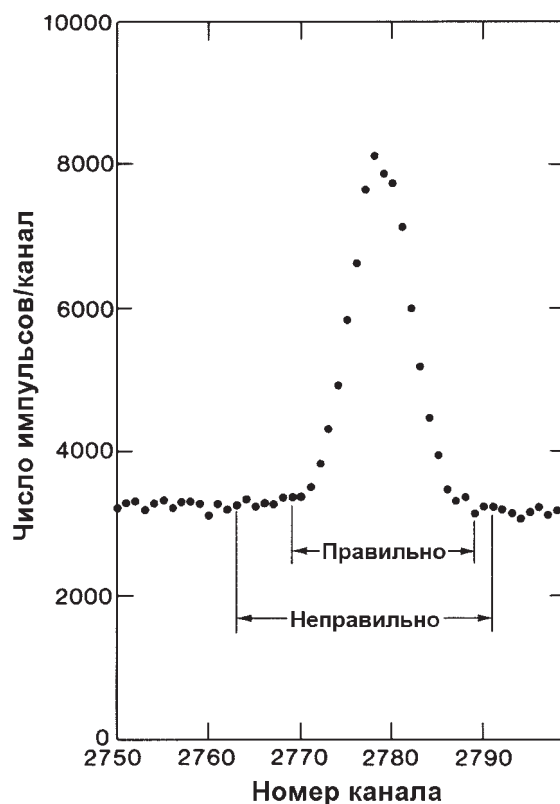


Рис. 5.5. Участок спектра с пиком, на котором представлены правильно и неправильно выбранные диапазоны суммирования при определении центроиды пика методом первого момента

ет использовать осторожно, поскольку рассчитанная центроида не будет совпадать с центроидой функции Гаусса, которая должна определяться при энергетической градуировке. Для использования процедуры первых моментов не требуется, чтобы пик имел форму функции Гаусса, но необходимо, чтобы он был симметричным.

5.1.7 Определение положения пика с помощью метода пяти каналов

Для оценки центроиды пика с помощью метода пяти каналов используется канал с максимальным числом отсчетов и два смежных с ним канала с каждой стороны. Соответствующая формула имеет следующий вид:

$$x_0 = x_m + \frac{y_{m+1}(y_m - y_{m-2}) - y_{m-1}(y_m - y_{m+2})}{y_{m+1}(y_m - y_{m-2}) + y_{m-1}(y_m - y_{m+2})}, \quad (5.10)$$

где m — номер канала с максимальным числом отсчетов;
 y_i — число отсчетов в канале x_i .

Уравнение (5.10) предполагает, что форма пика близка к форме кривой Гаусса. Подобная формула может быть выведена в предположении, что вершина пика имеет параболическую форму. Уравнение (5.10) хорошо работает, когда выше точки FWHM имеется от 6 до 30 каналов, а также достаточное число отсчетов в пяти каналах для четкого описания формы вершины пика. Для широких пиков, измеренных с низкой точностью, метод пяти каналов работает не так хорошо, как метод первых моментов. Однако метод пяти каналов менее чувствителен по сравнению с методом первых моментов к асимметричным хвостам для плохих детекторов.

5.1.8 Определение положения пика с помощью подгонки линеаризованной функцией Гаусса

Эта процедура преобразует пик в форме кривой Гаусса в линейную функцию, а затем подгоняет линию к преобразованному пику. Наклон и пересечение подгоняемой линии связаны с параметрами x_0 и σ . Фон под пиком предварительно вычитается так, чтобы подгонка выполнялась только к пику, который имеет форму кривой Гаусса.

Преобразования, которые линеаризуют функцию Гаусса, стали применяться совсем недавно для определения параметров пиков гамма-излучения [7]. Простейшим типом подобных преобразований является функция

$$Q(x) = \ln \frac{y(x-1)}{y(x+1)} = \frac{2}{\sigma^2} x - \frac{2x_0}{\sigma^2}, \quad (5.11)$$

где $y(x)$ — число отсчетов в канале x .

Последнее выражение в уравнении (5.11) справедливо, если $y(x)$ является обычной функцией Гаусса. Линейная функция $Q(x)$ имеет наклон m и пересечение b , определяемые как

$$\begin{aligned} m &= 2/\sigma^2; \\ b &= -2x_0/\sigma^2. \end{aligned} \quad (5.12)$$

Решая эти уравнения относительно σ^2 и x_0 , получаем

$$\begin{aligned} \sigma^2 &= 2/m; \\ x_0 &= -b/m. \end{aligned} \quad (5.13)$$

Уравнение (5.14) дает выражения для наклона и пересечения линии подгонки к набору точек $[x, Q(x)]$ методом взвешенных наименьших квадратов:

$$\begin{aligned} b &= \frac{1}{\Delta} \left(\sum \frac{x_i^2}{s_i^2} \sum \frac{Q_i}{s_i^2} - \sum \frac{x_i}{s_i^2} \sum \frac{x_i Q_i}{s_i^2} \right); \\ m &= \frac{1}{\Delta} \left(\sum \frac{1}{s_i^2} \sum \frac{x_i Q_i}{s_i^2} - \sum \frac{x_i}{s_i^2} \sum \frac{Q_i}{s_i^2} \right), \end{aligned} \quad (5.14)$$

где $\Delta = \sum \frac{1}{s_i^2} \sum \frac{x_i^2}{s_i^2} - \left(\sum \frac{x_i}{s_i^2} \right)^2$;

s_i^2 — оцененная дисперсия величины $Q(x)$.

Оцененная дисперсия $Q(x)$ является функцией только неопределенностей в $y(x)$:

$$s^2[Q(x)] = s_r^2[y(x-1)] + s_r^2[y(x+1)], \quad (5.15)$$

где $s_r(y) \equiv s(y)/y$

Если фон так мал, что им можно пренебречь, то

$$s_r^2[y(x)] \approx 1/y(x). \quad (5.16)$$

Если фон вычитается с помощью прямой линии по процедуре, показанной позднее в разделе 5.3.3, для оценки $s^2[y(x)]$ используется следующее выражение:

$$s^2[y(x)] = y_t(x) + \frac{1}{4} \left[k^2 \frac{B_h}{N_h^2} + (2-k)^2 \frac{B_1}{N_1^2} \right], \quad (5.17)$$

где $k = \frac{2(x-x_1)}{(x_h-x_1)}$.

Значение $y_t(x)$ является общим числом отсчетов в канале x , а значения других параметров даны в разделе 5.3.3.

Для линейной подгонки существуют простые выражения для оценок дисперсий s^2 значений m и b :

$$\begin{aligned} s^2(m) &\approx \frac{1}{\Delta} \sum \frac{1}{s_i^2}; \\ s^2(b) &\approx \frac{1}{\Delta} \sum \frac{x_i}{s_i^2}. \end{aligned} \quad (5.18)$$

Несмотря на то, что описанная процедура подгонки может казаться до некоторой степени сложной, она может производиться с помощью короткой вычислительной программы всего за несколько секунд. Чтобы избежать трудностей из-за хвостов пика, форма которых отличается от формы кривой Гаусса, и из-за неточных данных, функцию Гаусса следует подгонять только к верхней части пика, составляющей от трех четвертей до двух его третей. n каналов в пике позволяют определить $n-2$ параметра функции $Q(x)$. Когда при подгонке используются не менее четырех или пяти значений, их более чем достаточно, чтобы определить центры пиков, значения которых необходимы для энергетической градуировки. К сожалению, используя эту процедуру подгонки, очень трудно оценить статистическую неопределенность значения x_0 . Однако опыт показывает, что для пиков, имеющих приемлемые точности, значения x_0 получаются с погрешностью $\sim 0,1$ канала или лучше.

При автоматизированной обработке необходимо создать критерий для проверки пригодности функции Гаусса для описания входных данных. Приведенная статистика хи-квадрат χ^2/ν обеспечивает такой критерий. При линейной подгонке функции $Q(x)$ по отношению к x значения этой статистики определяются из выражения:

$$\chi^2 / \nu = \frac{1}{n-2} \left\{ \sum \frac{1}{s_i^2} [Q_i - (mx_i + b)]^2 \right\}, \quad (5.19)$$

где m и b вычисляются из уравнения (5.14), а n является числом значений функции $Q(x)$, которые используются при подгонке. Для хороших подгонок χ^2/ν должно быть близко к 1,00 (см. [5], где в доступной форме представлены описания свойств χ^2/ν). Величина χ^2/ν действительно составляет $\sim 1,00$ для пиков, которые имеют хорошую форму. Так как максимальное число отсчетов в канале увеличивается, то χ^2/ν возрастает, даже если форма пика остается такой же. Возрастание χ^2/ν не обязательно означает, что подгонка не отвечает требованиям определения градуировочной энергии или проверке разрешения. При низкой точности высокому качеству подгонки препятствует недостаточная статистика отсчетов; а при высокой точности ему мешают неизбежные небольшие отклонения формы пика от истинной формы кривой Гаусса, которые приводят к увеличению вычисляемого значения χ^2/ν . Практика подскажет приемлемое значение χ^2/ν для данного диапазона точности пика.

На рис. 5.6 показан пик спектра, измеренного с низкой точностью при помощи германиевого детектора (FWHM ~ 19 каналов), вместе с наложенной на него подгоняемой функцией Гаусса. Нижняя часть рисунка показывает график функции $Q(x)$ от x для верхних двух третей пика вместе с подгоняемой линией, а также параметры рассматриваемого пика.

5.1.9 Определение положения пика с использованием подгонки параболаризованной функцией Гаусса

Натуральный логарифм функции Гаусса является параболой, что становится заметным, когда пики полного поглощения рассматриваются с использованием дисплея МКА в логарифмическом масштабе. Натуральный логарифм функции Гаусса (уравнение (5.6)) представляется в виде

$$\ln y = c_2 x^2 + c_1 x + c_0, \quad (5.20)$$

где $c_2 = -1/2\sigma^2$;

$$c_1 = x_0 / \sigma^2;$$

$$c_0 = \ln y_0 - x_0^2 / 2\sigma^2.$$

Подгонка уравнения (5.20) к набору точек $(x_i, \ln y_i)$ дает значения c_2 , c_1 и c_0 , которые позволяют получить параметры кривой Гаусса:

$$x_0 = -c_1 / 2c_2;$$

$$\sigma = \sqrt{-1/2c_2};$$

$$\ln y_0 = c_0 - c_1^2 / 4c_2. \quad (5.21)$$

Подгоняемая кривая является параболой, которая направлена крыльями вниз, а ее ось параллельна оси y . Процедура, описанная здесь, позволяет определить значение y_0 в дополнение к двум параметрам: x_0 и b , полученным с помощью подгонки линеаризованной функцией Гаусса. Следовательно, площадь пика полного поглощения можно определить с помощью уравнения (5.8).

На рис. 5.7 показана подгонка параболаризованной кривой Гаусса к пику спектра высокой точности от гамма-излучения ^{57}Co с энергией 122,0 кэВ. Использовался тот же германиевый детектор высокого качества, что и на рис. 5.3(а). Сбор

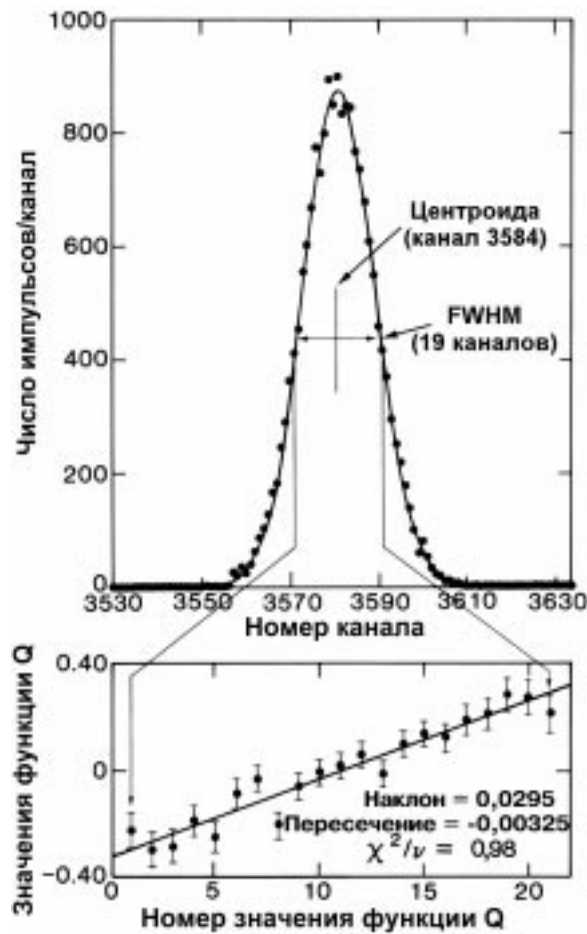


Рис. 5.6. Верхняя часть рисунка показывает пик, измеренный с низкой точностью при помощи детектора высокого разрешения, к которому подгонялась линеаризованная функция Гаусса. Нижняя часть рисунка показывает график точечных значений $Q(x)$ и подогапанную линию

заряда на низких энергиях в германиевом детекторе производился более полный, чем на высокой энергии, что привело к меньшему затягиванию низкоэнергетического хвоста. Сравнение рис. 5.3 (а) и 5.7 показывает, что затягивание хвоста пика 122 кэВ на рис. 5.7 даже ниже, чем небольшое затягивание хвоста пика 1332 кэВ на рис. 5.3 (а).

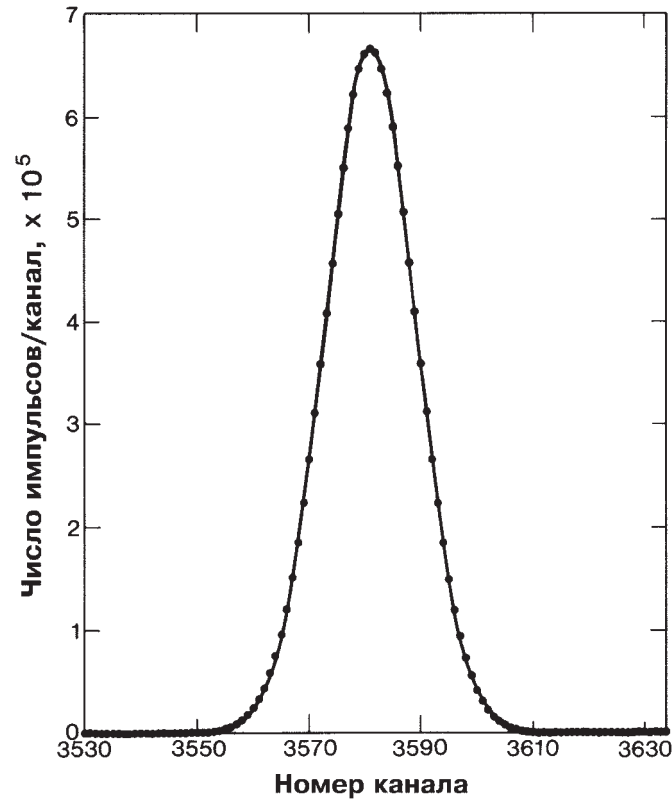


Рис. 5.7. Участок спектра с пиком полного поглощения ^{57}Co с энергией 122,0 кэВ. Спектр получен с помощью коаксиального германиевого детектора высокого разрешения с хорошей формой пика полного поглощения. Кривой подгонки является параболаризованная функция Гаусса

Выражения для подгонки взвешенных наименьших квадратов приведены здесь для удобства возможных пользователей. Выражения даны в форме определителей и включают восемь сумм, обозначенных S1, S2, ..., S8.

$$\begin{aligned}
 c_0 &= \frac{1}{\Delta} \begin{vmatrix} S_6 & S_2 & S_3 \\ S_7 & S_3 & S_4 \\ S_8 & S_4 & S_5 \end{vmatrix}, \\
 c_1 &= \frac{1}{\Delta} \begin{vmatrix} S_1 & S_6 & S_3 \\ S_2 & S_7 & S_4 \\ S_3 & S_8 & S_5 \end{vmatrix}, \\
 c_2 &= \frac{1}{\Delta} \begin{vmatrix} S_1 & S_2 & S_6 \\ S_2 & S_3 & S_7 \\ S_3 & S_4 & S_8 \end{vmatrix},
 \end{aligned} \tag{5.22}$$

$$\text{где } \Delta = \begin{vmatrix} S1 & S2 & S3 \\ S2 & S3 & S4 \\ S3 & S4 & S5 \end{vmatrix};$$

$$S1 = \sum \frac{1}{s_i^2}; \quad S2 = \sum \frac{x_i}{s_i^2}; \quad S3 = \sum \frac{x_i^2}{s_i^2}; \quad S4 = \sum \frac{x_i^3}{s_i^2};$$

$$S5 = \sum \frac{x_i^4}{s_i^2}; \quad S6 = \sum \frac{\ln y_i}{s_i^2}; \quad S7 = \sum \frac{x_i \ln y_i}{s_i^2}; \quad S8 = \sum \frac{x_i^2 \ln y_i}{s_i^2}.$$

Как обычно, суммирование производится по всем точкам подгонки. В значениях y_i вычтен фон. Кроме того, для процедуры подгонки требуются следующие выражения:

$$s_i = s(\ln y_i),$$

$$s(\ln y) = \frac{s(y)}{\ln y}, \quad (5.23)$$

где $s(y)$ определяется уравнением (5.17). Выражение для χ^2/ν , которое представляет статистику качества подгонки, определяется следующей формулой:

$$\chi^2 / \nu = \frac{1}{n-3} \left\{ \sum_i \frac{1}{s_i^2} [\ln y_i - (c_2 x_i^2 + c_1 x_i + c_0)]^2 \right\}, \quad (5.24)$$

где n — число точек подгонки, а c_2 , c_1 и c_0 — величины, которые определяются из уравнения (5.22).

Замечания, сделанные в предыдущем разделе относительно части пика, которую следует подгонять, и относительно тенденций статистики χ^2/ν в данном случае также справедливы. Квадратичные подгонки предъявляют определенные требования к компьютеру, и для выполнения правильной квадратичной подгонки с заданной точностью часто недостаточно шестизначных десятичных цифр, которые обеспечиваются 16-ти разрядными процессорами, работающими с одинарной точностью.

5.1.10 Определение положения пика с помощью сложных программ подгонки спектра

Для анализа сложных спектров с перекрывающимися пиками используются большие вычислительные программы подгонки. Они описывают пики функциями, которые используют функцию Гаусса в качестве основной, с добавлением хвостовых функций для более точного описания формы пика. Для подгонки данных используется итерационная нелинейная процедура наименьших квадратов. Центроида функции Гаусса, которая является составляющей пика, принимается за положение пика и используется для определения значения энергии рассматриваемого гамма-излучения.

5.2 ИЗМЕРЕНИЯ РАЗРЕШЕНИЯ ДЕТЕКТОРА

5.2.1 Введение

Этот раздел посвящается, главным образом, измерению разрешения детектора. Трудно переоценить важность обеспечения разрешения и хорошей формы пика для получения правильных результатов НРА. Узкая кривая Гаусса, используемая для описания формы пика, упрощает определение площади и минимизирует возможность появления смещения результатов анализа.

Полная ширина пика на половине высоты (FWHM или FW0,5M) является основной мерой разрешения пика. Она обычно приводится в единицах энергии (кэВ) для детекторов высокого разрешения, либо выражается в процентах от измеряемой энергии для детекторов низкого разрешения. Разрешение, измеренное в единицах энергии, возрастает с увеличением энергии: $FWHM^2 \approx a + bE$. Разрешение, измеряемое в процентах, уменьшается с увеличением энергии.

Большинство детекторов дают пики полного поглощения, которые выше уровня половины высоты являются фактически кривыми Гаусса. Отношение полной ширины на высотах ниже, чем половина максимума, к FWHM долго использовалось для количественного определения качества формы пика полного поглощения. Для описания качества формы пика производители измеряют FWHM (или FW0,5M) и ее отношение к полной ширине на одной десятой части максимума (FW0,1M); в течение многих лет величина FW0,1M/FW0,5M менее 1,9 считалась соответствующей хорошей форме пика. Сейчас, когда требуется наилучшая форма пика, определяют отношение FW0,02M/FW0,5M и даже FW0,01M/FW0,5M.

В табл. 5.3 приведены теоретические отношения для кривой Гаусса и измеренные отношения для коаксиального германиевого детектора высокого качества. Таблица показывает, что действительная форма пика близка к идеальной кривой Гаусса. Отношения на одной пятидесятой и одной сотой от максимума пика следует измерять после вычитания фона.

Таблица 5.3 – Теоретические и измеренные отношения разрешений

	FW0,1M/FW0,5M	FW0,02M/FW0,5M	FW0,01M/FW0,5M
Функция Гаусса	1,823	2,376	2,578
122,0 кэВ	1,829	2,388	2,599
	(1,003)*	(1,005)*	(1,008)*
1332,5 кэВ	1,856	2,428	2,640
	(1,018)*	(1,022)*	(1,024)*

* Отношение измеренного отношения к теоретическому отношению для функции Гаусса.

Спектр импульсов от детектора является сплошным, несмотря на то, что МКА или ОКА группирует импульсы в энергетических интервалах. Предполагается, что все события в интервале могут быть представлены энергией центра интервала. Когда функция Гаусса подгоняется к центральным точкам этого интервала, параметр ширины σ оказывается слегка больше, чем параметр исходного не-

прерывного распределения. Как предлагается в работе [8], дисперсия кривой Гаусса и действительная дисперсия соотносятся как

$$(\sigma^2)_G = (\sigma^2)_A + h^2 / 12,$$

$$(\text{FWHM}^2)_G = (\text{FWHM}^2)_A + 0,462h^2, \quad (5.25)$$

где $(\sigma^2)_G$ – дисперсия для интервального представления спектра;
 $(\sigma^2)_A$ – действительная дисперсия;
 h – ширина интервала (ширина канала МКА или окна ОКА).

Для спектра, измеренного МКА, величина h имеет размерность кэВ/канал, если величина FWHM представлена в кэВ, и $h=1,00$, если величина FWHM представлена числом каналов. В табл. 5.4 приведены соотношения $(\text{FWHM})_A / (\text{FWHM})_G$. Чтобы измерить действительное разрешение с погрешностью до 0,1 %, усиление системы должно быть отрегулировано так, чтобы обеспечить более 15 каналов в $(\text{FWHM})_G$. Если $(\text{FWHM})_G$ составляет всего 3 канала, то $(\text{FWHM})_A$ переоценена на ~ 3 %. Поправка не имеет практического смысла для площади пика полного поглощения. Функция Гаусса, подгоняемая к набранным точкам, имеет ту же площадь (с точностью лучше, чем 0,01 %), что и непрерывное распределение, потому что параметр y_0 уменьшается почти точно с таким же коэффициентом, с каким возрастает параметр ширины.

Таблица 5.4 – Отношение $(\text{FWHM})_A$ к $(\text{FWHM})_G$

FWHM _G , каналы	FWHM _A /FWHM _G
3,0	0,9740
5,0	0,9907
10,0	0,9971
15,0	0,9990
20,0	0,9994
25,0	0,9996
30,0	0,9997
35,0	0,9998
40,0	0,9999

5.2.2 Определение ширины пика с помощью визуальной оценки изображения на дисплее МКА

Визуальная оценка показывает себя наилучшим образом для МКА, которые имеют горизонтальные и вертикальные линии сетки и соответствующие ручки для управления вертикальной и горизонтальной развертками изображения. Многие маленькие МКА имеют такие возможности. Большие лабораторные модули обычно не позволяют пользователю осуществлять какой-либо контроль над вертикальным положением изображения.

Для определения значения FWHM с погрешностью до ~1 %, должен быть выбран такой коэффициент усиления энергии, чтобы FWHM составляла ≥ 10 каналов. После того как спектр получен, ручки регулировки дисплея устанавливаются так, чтобы отдельные каналы были разрешены и одна из горизонтальных линий решетки пересекала пик на половине максимума. На рис. 5.8 показан пик, разделенный горизонтальной линией на уровне половины максимума. После того как пик разделен пополам, подсчитываются каналы выше горизонтальной линии, оценивая их до десятых долей канала. Поскольку каналы нанесены в виде точек, фактически считают пространство между точками. Обычно фон на высокоэнергетической стороне пика считают "основанием" пика. Наклон линии энергетической градуировки используется для преобразования значения FWHM, выраженного в каналах, в энергию. Если энергетическая градуировка не была выполнена, можно использовать многоэнергетические источники. Большие германиевые детекторы градуируются с помощью гамма-излучения ^{57}Co с энергиями 122,06 и 136,47 кэВ и с помощью гамма-излучения ^{60}Co с энергиями 1173,2 и 1332,5 кэВ. В каждом из этих случаев энергетическая градуировка может быть

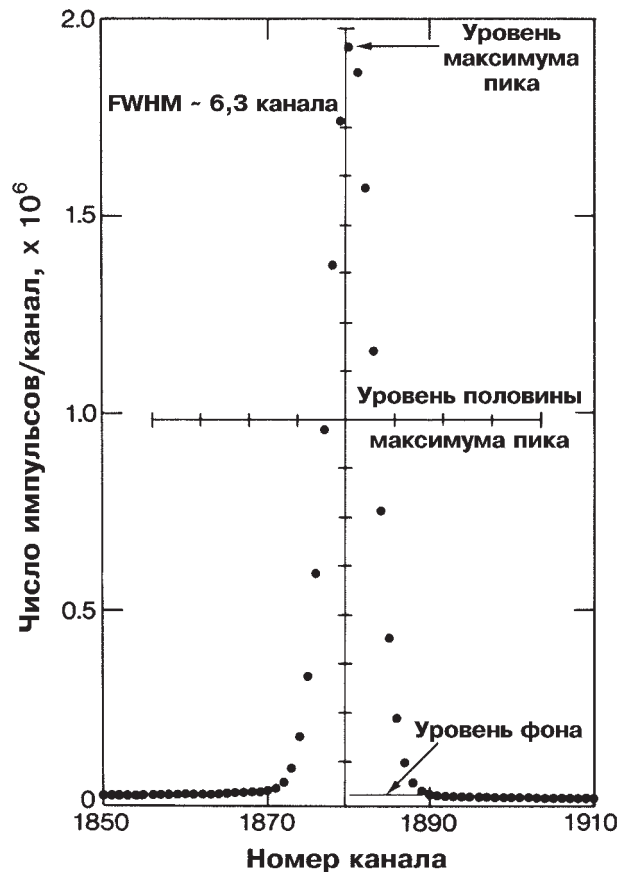


Рис. 5.8. Пик полного поглощения, разделенный на две части центральной линией дисплея МКА. Значение FWHM равно числу каналов выше уровня на половине максимума пика

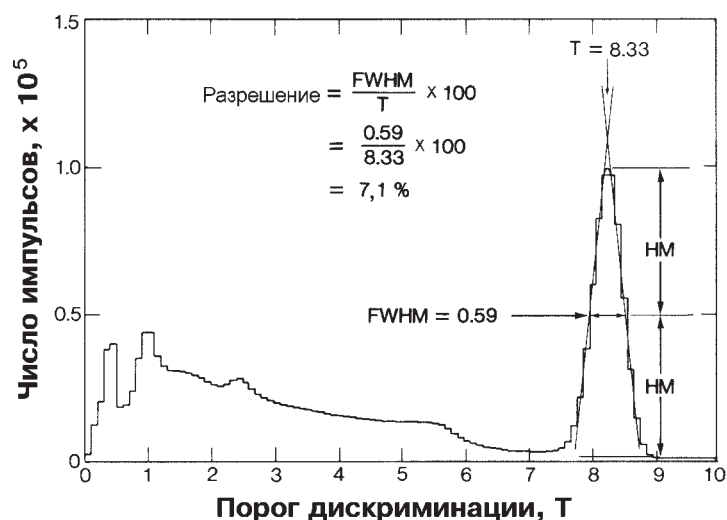


Рис. 5.9. Спектр ^{137}Cs , полученный ОКА с помощью детектора NaI

определена по расстоянию между парой пиков в каналах и известной разности энергий¹. Затем определяется разрешение, умножением значения FWHM, выраженного в каналах для 122 или 1332,5 кэВ пика, на наклон соответствующей энергетической градуировки (кэВ/канал). После небольшой практики значения FWHM (кэВ) могут быть определены с погрешностью 1 %.

5.2.3 Графическое определение ширины пика

Для измерения разрешения может быть использован такой же тип графика, как для энергетической градуировки (раздел 5.1.5); в действительности эти два измерения могут быть объединены. Для оценки максимальной высоты пика и линии на половине максимума пика необходимо нарисовать форму верхней части пика. На рис. 5.9 изображен тот же спектр ^{137}Cs , что и на рис. 5.4, но дополнительно показаны верхняя часть пика, линия на половине максимума и приведена оценка величины FWHM.

5.2.4 Определение ширины пика с помощью аналитической интерполяции

Процедура, приведенная ниже, количественно описывает графическую процедуру, представленную в предыдущем разделе. Большинство функций для определения значения FWHM, встроенных в современные системы МКА, используют некоторые вариации этой процедуры. Интерполяционная процедура особенно полезна тем, что позволяет легко определить полную ширину на любой доле высоты пика.

1 Наиболее точное значение разности энергий между двумя гамма-излучениями ^{57}Co составляет 14,413 кэВ, наиболее точное значение разности энергий между двумя гамма-излучениями ^{60}Co составляет 159,27 кэВ.

На рис. 5.10 показан пик полного поглощения и канал, который соответствует максимальному числу отсчетов и расположен близко к центру. На рисунке линия, пересекающая пик, показывает часть высоты, на которой оценивается ширина пика. Координаты точек по оси x пересечения пика линией на высоте, составляющей K -ю часть от максимума пика, равны

$$\begin{aligned} x_1 &= \frac{K y_p - y_1}{y_2 - y_1} + x_1, \\ x_h &= \frac{y_3 - K y_p}{y_3 - y_4} + x_3, \end{aligned} \quad (5.26)$$

где K — часть пика относительно его максимума, на которой оценивается ширина пика;

y_x — число отсчетов в канале x ;

y_p — число отсчетов в канале с максимальной интенсивностью;

x_l — координата на оси x пересечения K -линии с низкоэнергетической стороной пика;

x_h — координата на оси x пересечения K -линии с высокоэнергетической стороной пика;

x_1, x_2 — каналы ниже и выше x_l ;

x_3, x_4 — каналы ниже и выше x_h .

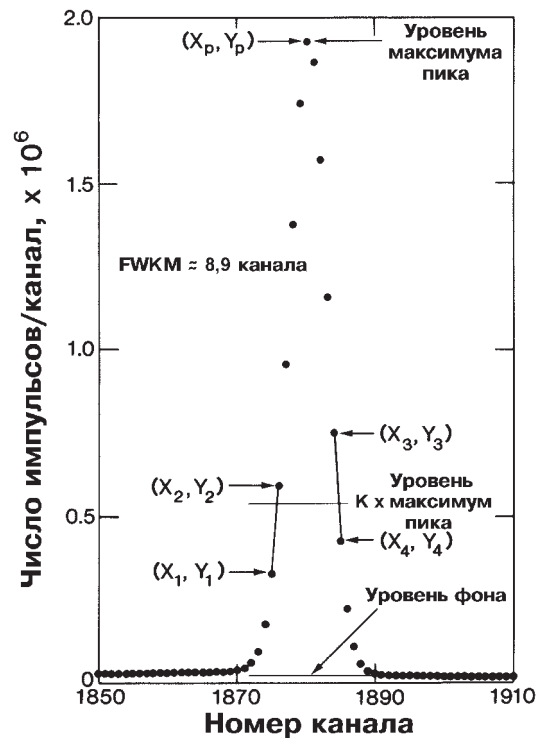


Рис. 5.10. Диаграмма процедуры определения значения $FWKM$ с помощью линейного интерполирования. Значение коэффициента K может изменяться в пределах от 0,0 до 1,0

Полная ширина на уровне К-й части от максимума пика (FWKM) равна

$$FWKM = x_h - x_1 = (x_3 - x_1) + \left[\left(\frac{y_3 - Ky_p}{y_3 - y_4} \right) - \left(\frac{Ky_p - y_1}{y_2 - y_1} \right) \right]. \quad (5.27)$$

Для получения наиболее точных результатов необходимо наиболее точно оценить величину y_p . Когда на вершине пика находятся два канала с равными числами отсчетов, максимальное значение пика явно выше максимального значения в канале. Максимальное значение в канале недооценивает величину Ky_p и дает немного большее значение величины FWKM. Процедуру следует применять к пикам, которые близки к симметричным относительно канала с максимальным числом отсчетом. Максимум пика y_p может быть точно определен с помощью подгонки кривой Гаусса к верхней части пика. Форма пика может быть точно определена, если использовать пик с хорошей статистической точностью на всех измеряемых уровнях. Для измерения FW 0,01M следует использовать $y_p \sim 10^6$ так, чтобы погрешность на уровне 0,01 все еще была равна $\sim 1\%$. Для получения состоятельных результатов для пиков с плохой точностью может быть использовано сглаживание; однако процедура сглаживания всегда немного расширяет пики.

5.2.5 Определение ширины пика с помощью метода вторых моментов

Метод вторых моментов для определения параметра ширины σ аналогичен методу первых моментов, который используется для получения центроиды. Второй момент нормализованной функции Гаусса равен σ^2 — дисперсии функции. Для ненормализованной функции в уравнении (5.6) второй момент определяется следующей функцией:

$$\sigma^2 = \frac{\int_{-\infty}^{\infty} (x - x_0)^2 y(x) dx}{\int_{-\infty}^{\infty} y(x) dx} \approx \frac{\sum (x_i - x_0)^2 y_i}{\sum y_i}. \quad (5.28)$$

Уравнение (5.7) дает зависимость параметра σ от величины FWHM.

Перед тем как использовать уравнение (5.28) из числа отсчетов предварительно следует вычесть фон. Суммы вычисляются на диапазоне, равном или большем утроенного значения величины FWHM. Метод следует использовать для пиков со значительной асимметрией или с формой, отличной от кривой Гаусса.

Процедура полезна для широких пиков с формой, близкой к кривой Гаусса, измеренных с низкой точностью, для которых методы линейной интерполяции хорошо не работают. Определения первых и вторых моментов обычно производятся вместе потому, что в алгоритме второго момента требуется знание значения центроиды, полученного при использовании алгоритма первого момента.

5.2.6 Определение ширины пика с помощью подгонки линеаризованной функцией Гаусса

В разделе 5.1.8 было показано, что уравнение (5.11) может быть использовано для линеаризации кривой Гаусса. Наклон и пересечение подгоняемой линии связаны с центроидой пика и величиной FWHM (уравнения (5.7) и (5.13)). Процедура линеаризации кривой Гаусса является хорошей проверкой энергетической градуировки и разрешения детектора. Проверка двух пиков (на высоких и низких энергиях) гарантирует правильность работы электроники системы НРА. Эта проверка может быть важной частью программы контроля измерения для гамма-спектрометрической системы НРА высокого разрешения.

5.2.7 Определение ширины пика с помощью подгонки параболизированной функцией Гаусса

В разделе 5.1.9 было показано, что натуральный логарифм функции Гаусса является квадратичной функцией от x . Подгонка этой функции к набору точек $(x_i, \ln y_i)$ дает параметры функции Гаусса x_0 , y_0 и σ и обеспечивает другой способ определения ширины пика, близкого по форме к кривой Гаусса.

5.3 ОПРЕДЕЛЕНИЕ ПЛОЩАДИ ПИКА ПОЛНОГО ПОГЛОЩЕНИЯ

5.3.1 Введение

Амплитудно-импульсный спектр гамма-излучения содержит много полезной информации о значениях энергии и интенсивности гамма-излучений. Одной из самых важных забот при использовании гамма-спектрометрии является правильное выделение нужной информации. Как правило, самой важной информацией является площадь пика полного поглощения и связанная с ней неопределенность.

Пики полного поглощения энергетических спектров расположены на фоне, вызванном комптоновским рассеянием гамма-излучений более высоких энергий. Основным фундаментальным ограничением в получении несмещенных значений площадей пиков является определение фона. Когда фон мал по сравнению с пиком, он может внести только небольшую часть в общую погрешность определения площади пика. Однако, когда отношение площади пика к площади фона становится меньше, чем 1,0, возможность смещения результата быстро возрастает.

Для многих задач НРА вполне пригодны простые методы вычитания фона. При определенных обстоятельствах должны использоваться сложные вычислительные программы подгонки спектров с длинными и короткими функциями для описания хвостов. Проблема учета событий рассеяния на малые углы становится серьезной для детекторов с низким разрешением, но иногда для решения этой проблемы можно применить рассчитанные поправки [9].

5.3.2 Выбор рассматриваемых областей

Выбор рассматриваемых областей (РО) является таким же важным, как выбор алгоритмов для оценки площадей пиков. Большинство процедур для определения уровня фона на низкоэнергетической и высокоэнергетической сторонах пика или мультиплета используют две РО. Среднее число отсчетов в канале на РО принимается как уровень фона в центре РО. Третья РО определяет область пика.

Для функции Гаусса 99,96 % площади лежит внутри области с центром x_0 , ширина которой равна утроенному значению FWHM функции Гаусса. Амплитуда функции Гаусса в точках с координатами $(x_0 \pm 1,75 \text{ FWHM})$ составляет только 0,0082 % от максимального значения в точке x_0 , поэтому РО фона, которые начинаются в этих точках, имеют минимальные вклады от пика. Таким образом, РО пика, равная утроенному FWHM, и РО фона, помещенные симметрично и равные от 3,5 до 4,0 FWHM каждая, представляют ~ 99,9 % площади пика.

В принципе, фон оценивается более точно, если РО фона выбраны достаточно хорошо. Однако, вероятность появления систематической ошибки возрастает с увеличением энергетических диапазонов. Для большинства задач НРА вполне подходят РО фона с шириной, изменяющейся в диапазоне от 0,5 до 1,0 FWHM. При энергетической градуировке 0,1 кэВ/канал РО фона обычно имеет ширину от трех до пяти каналов. Когда между соседними пиками расстояние очень мало, приходится использовать в качестве РО фона от одного до двух каналов. Пики, центры которых отделены друг от друга на расстояние $3 \times \text{FWHM}$, считаются разрешенными; обычно между ними может быть помещена узкая РО фона. Лучше пожертвовать статистической точностью, чем ввести смещение за счет использования слишком широких РО фона.

Спектры, пики которых имеют значительные низкоэнергетические и высокоэнергетические хвосты, требуют более широких РО для пиков, чем три FWHM. Так как разрешение пика ухудшается при высоких нагрузках, РО пиков должны быть установлены на спектре при высокой скорости счета (низкое разрешение). Обычно лучшие результаты получаются, если все РО имеют равную ширину; следовательно, РО для пиков на низких энергиях и пика генератора импульсов устанавливаются несколько шире, чем утроенное значение FWHM.

Для точного и согласованного выбора РО могут быть написаны специальные вычислительные программы. Чтобы удерживать определенные пики внутри однажды выбранной РО в течение длительного времени, можно использовать цифровую стабилизацию. Иногда требуется несколько изменить спектр, чтобы достичь определенной установки РО. Существуют вычислительные программы, которые могут изменить содержимое спектра, чтобы установить любую требуемую энергетическую градуировку с небольшой степенью ухудшения качества спектра.

5.3.3 Вычитание линейного комптоновского фона

Часто вполне подходит аппроксимация комптоновского фона прямой линией между высоко- и низкоэнергетическими сторонами отдельных пиков или групп перекрывающихся пиков. На рис. 5.11 показано, как выбирают РО, и введены символичные обозначения, которые используются ниже в уравнениях для определения фона. Заметим, что нет необходимости располагать РО фона сим-

метрично по отношению к пику, как нет необходимости устанавливать их равной ширины. Фон является площадью трапеции под линией фона, которая задается уравнением:

$$B = [Y(F_p) + Y(L_p)](N_p / 2), \quad (5.29)$$

где $Y(F_p) = mF_p + b$;

$$Y(L_p) = mL_p + b$$

и где $m = (Y_h - Y_1) / (X_h - X_1)$;

$$b = (X_h Y_1 - X_1 Y_h) / (X_h - X_1).$$

Дисперсия фона B

$$S^2(B) = \left(\frac{N_p}{2}\right)^2 \left[K^2 \frac{B_h}{N_h^2} + (2-K)^2 \frac{B_1}{N_1^2} \right], \quad (5.30)$$

где $K = \frac{(F_p + L_p - 2X_1)}{(X_h - X_1)}$.

Уравнение (5.30) не предполагает существования неопределенностей в положении границ РО и является функцией только статистических неопределенностей величин B_h и B_1 , которые оцениваются посредством $S^2(B_h) = B_h$ и $S^2(B_1) = B_1$. Уравнение (5.30) справедливо, когда РО фона расположены несимметрично относительно РО пика. Если РО фона расположены симметрично по отношению к РО пика, выражения для B и $S^2(B)$ упрощаются. Требование симметричности означает, что $(F_p - X_1) = (X_h - L_p)$ и $K = 1$, и тогда выражения становятся следующими:

$$B = \left(\frac{Y_1 + Y_h}{2}\right) N_p = \left(\frac{B_h}{N_h} + \frac{B_1}{N_1}\right) \frac{N_p}{2} \quad (5.31)$$

и

$$S^2(B) = \left(\frac{N_p}{2}\right)^2 \left(\frac{B_h}{N_h^2} + \frac{B_1}{N_1^2}\right). \quad (5.32)$$

Часто уравнения (5.31) и (5.32) используются даже тогда, когда требование симметричности не выполняется, и если чистые площади пиков много больше, чем вычтенный фон. Имея дело со сложными спектрами (хорошим примером являются спектры плутония), часто приходится использовать асимметрично расположенные РО. Когда требуемые вычисления производятся внутренними процессорами МКА, следует использовать уравнения (5.29) и (5.30) потому, что они дают наилучшие результаты при использовании любой версии линейной процедуры.

Для проведения вычислений с использованием небольших калькуляторов, желательны наиболее простые выражения, поэтому РО следует выбирать соответствующим образом. Если $N_h = N_1 \equiv N_c$, уравнения (5.31) и (5.32) упрощаются до

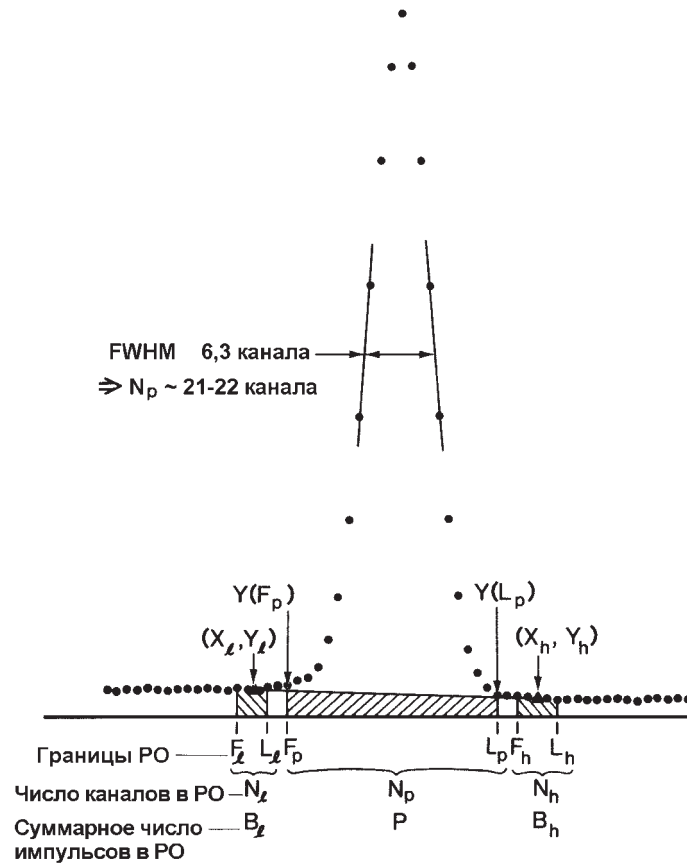


Рис. 5.11. Рассматриваемые области (РО) и параметры, которые используются для вычисления чистой площади пика полного поглощения и оценки ее стандартного отклонения

$$B = \frac{N_p}{2N_c} (B_h + B_l) \quad (5.33)$$

и

$$S^2(B) = \left(\frac{N_p}{2N_c} \right)^2 (B_h + B_l). \quad (5.34)$$

Если можно выбрать РО так, чтобы $N_c = N_p/2$, выражения достигают самой простой формы:

$$B = (B_h + B_l) \quad (5.35)$$

и

$$S^2(B) = (B_h + B_l) = B. \quad (5.36)$$

5.3.4 Вычитание сглаженной ступеньки комптоновского фона

Комптоновский фон под пиком полного поглощения в действительности не является прямой линией. Большая часть фона под пиком вызвана комптоновским рассеянием гамма-излучения более высокой энергии на большие углы или наложением импульсов от взаимодействий гамма-излучения более низкой энергии. Часть фона под пиком вызвана гамма-излучением, соответствующим данному пику, но которое претерпело комптоновское рассеяние на малые углы, а также событиями полного поглощения энергии рассматриваемого гамма-кванта при неполном сборе заряда; этот вклад может быть описан функцией сглаженной ступеньки.

Ганнинк [10] изобрел оригинальную процедуру для моделирования сглаженной ступеньки фона под одиночными пиками или мультиплетами, основанную на использовании формы спектра. Процедура дает результаты лучше, чем прямолинейная аппроксимация фона, особенно для перекрывающихся пиков в мультиплете. Для чистых одиночных пиков часто наблюдается лишь незначительное улучшение.

На рис. 5.12 приведен график мультиплета и фона ступеньки-функции в логарифмическом масштабе. Используя обозначения, приведенные на рис. 5.11, фон в канале n равен

$$B_n = Y_1 - D \left[\frac{\sum_{i=X_1+1}^{i=n} (y_i - Y_h)}{\sum_{i=X_1+1}^{i=X_h} (y_i - Y_h)} \right], \quad (5.37)$$

где y_i — суммарное число отсчетов в канале i ;

$$D = Y_c - Y_h;$$

$$B(X_c) = Y_c;$$

$$B(X_h) = Y_h.$$

Значение фона Y_h вычитается из содержимого каждого канала, поскольку комптоновские события от гамма-излучений с высокой энергией не могут влиять на форму сглаженной ступеньки для пика полного поглощения гамма-излучения с низкой энергией. Уравнение (5.37) можно использовать, когда фон под пиком или мультиплетом имеет слабо отрицательный или нулевой наклон.

Значительное затруднение в использовании процедуры сглаженной ступеньки вызвано тем, что выражение для оценки дисперсии величины чистой площади становится чрезвычайно сложным, когда выводится из уравнения (5.37). Выражение для оценки дисперсии (уравнение (5.30)), основанное на прямолинейной аппроксимации, намного проще и имеет почти такую же точность.

5.3.5 Вычитание комптоновского фона при использовании единственной рассматриваемой области фона

Иногда проведение оценки фона по единственной РО является желательным и необходимым. Например, единственная РО часто предпочтительна при использовании детектора NaI и одноканального анализатора при измерении обогащения ^{235}U или содержания ^{239}Pu .

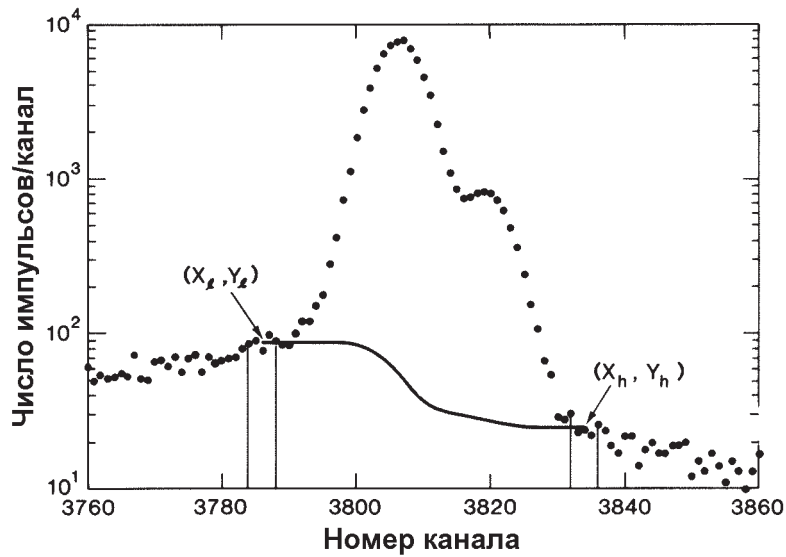


Рис. 5.12. Дублет пиков с оцененным фоном спектра, который рассчитывался с помощью простого алгоритма сглаженной ступеньки

Когда отношение сигнала к фону велико, может оказаться достаточным предположение плоской формы фона. Здесь вклад фона в РО пика определяется как:

$$B = \frac{N_p}{N_h} B_h, \quad (5.38)$$

$$s(B) \approx \frac{N_p}{N_h} s(B_h). \quad (5.39)$$

Хотя данная процедура очень часто используется со сцинтилляторами низкого разрешения, она также применяется и с германиевыми детекторами в тех случаях, когда на низкоэнергетической стороне пика трудно выбрать удобное место для РО фона.

Если фон не плоский, но можно предположить, что он имеет постоянный наклон на соответствующем энергетическом отрезке, уравнение (5.38) может быть преобразовано к виду

$$B = KB_h, \quad (5.40)$$

где K является постоянным коэффициентом, который определяется экспериментально. Если радиоактивность окружающей среды является основным вкладом в комптоновский фон, для определения значения K может быть использован спектр "без образца". Если в фоне доминирует гамма-излучение более высоких энергий от образца, значение K можно оценить по спектру МКА. Часто значение K изменяется от образца к образцу. Хотя эти процедуры с единственной РО имеют ограниченную точность, их часто предпочитают использовать, чтобы полностью решить проблему фона.

5.3.6 Вычитание комптоновского фона с помощью процедуры двух стандартных образцов

Измерение обогащения ^{235}U по гамма-излучению с энергией 185,7 кэВ является успешным применением одного окна ОКА для поправки на фон. Предположение о постоянстве формы фона является оправданным, и постоянная K уравнения (5.40) может быть определена точно. Обогащение E определяется уравнением

$$E = C(P - KB), \quad (5.41)$$

где C является константой, которая выражается в $\% \text{ } ^{235}\text{U}/\text{имп.}$ Для двух стандартных образцов с различным обогащением, измеренных в течение равных периодов времени, уравнение (5.41) имеет вид

$$\begin{aligned} E_1 &= C(P_1 - KB_1), \\ E_2 &= C(P_2 - KB_2). \end{aligned} \quad (5.42)$$

Решая эти уравнения, получают

$$\begin{aligned} C &= (E_2B_1 - E_1B_2) / (P_2B_1 - P_1B_2), \\ K &= (E_2P_1 - E_1P_2) / (E_2B_1 - E_1B_2). \end{aligned} \quad (5.43)$$

Уравнение (5.41) может быть записано в виде

$$E = aP - bB, \quad (5.44)$$

где $a = \frac{E_2B_1 - E_1B_2}{P_2B_1 - P_1B_2}$;

$$b = \frac{P_1E_2 - P_2E_1}{P_2B_1 - P_1B_2}. \quad (5.45)$$

Метод двух стандартных образцов можно использовать для измерения низкоактивных радиоактивных загрязнений воды или других жидкостей (см. главу 7 об обогащении урана, где эта процедура описана более подробно).

5.3.7 Использование сумм числа отсчетов в рассматриваемых областях для измерения площадей пиков

Для хорошо разрешенных пиков простое суммирование числа отсчетов над оцененным фоном вероятно также хорошо, как любой другой метод определения площади пика. Этот метод поканального суммирования не имеет проблем из-за несовершенства моделей формы пика, которые присущи вычислительным программам подгонки спектра. Метод суммирования в РО вполне терпим к небольшим вариациям в форме пика и обеспечивает точную и непосредственную оценку погрешности чистой площади пика.

Для всех процедур суммирования в РО, площадь пика определяется выражением:

$$A = P - B, \quad (5.46)$$

где P — интеграл РО пика;

B — вклад от фона.

Выражения для $S^2(A)$, оценки дисперсии чистой площади, изменяются в соответствии с процедурой, используемой для оценки фона.

Когда B оценивается линейной интерполяцией по РО фона на каждой стороне от РО пика, оценка дисперсии площади пика определяется как

$$S^2(A) = S^2(P) + S^2(B) = P + S^2(B). \quad (5.47)$$

Уравнения от (5.29) до (5.36) дают B и $S^2(B)$ для различных условий, которые включают значения ширины и положение РО фона по отношению к РО пика. Выражения объединены в табл. 5.5. Простейшие выражения получаются, когда РО фона помещены симметрично относительно РО пика и имеют подходящие значения ширины. Когда имеется компьютер с требуемым объемом памяти, следует использовать самую общую форму выражений так, чтобы РО могли быть установлены без каких-либо ограничений.

Когда для оценки фона используется функция пошагового сглаживания, уравнения (5.46) и (5.37) объединяются, чтобы дать

$$A = P - \sum_{n=F_p}^{L_p} \left\{ Y_1 - D \left[\frac{\sum_{i=X_1+1}^n (y_i - Y_h)}{\sum_{i=X_1+1}^{X_h} (y_i - Y_h)} \right] \right\}. \quad (5.48)$$

Поскольку оценка фона является функцией числа отсчетов в каналах, точные выражения для $S^2(A)$ становятся очень сложными. Следует использовать одну из оценок $S^2(A)$, приведенных в табл. 5.5.

Когда для фона используется единственная РО, уравнение (5.46) остается в силе для чистой площади пика, а выражение для $S^2(A)$ основано на уравнении (5.47). Если предположить, что фон является плоским (уравнение (5.38)), то выражения для A и $S^2(A)$ имеют следующий вид:

$$A = P - \frac{N_p}{N_h} B_h, \quad (5.49)$$

$$S^2(A) = P + \left(\frac{N_p}{N_h} \right)^2 B_h.$$

Для наклонного фона (уравнение (5.40)) выражения для A и $S^2(A)$ приобретают следующий вид:

$$A = P - KB_h, \quad (5.50)$$

$$S^2(A) = P + K^2 B_h.$$

Заметим, что хотя уравнения (5.49) и (5.50) могут правильно оценить повторяемость измерений, они не позволяют оценить какое-либо смещение результатов анализа, обусловленное природой аппроксимации оценки фона по одной РО.

Таблица 5.5 – Выражения для чистых площадей пиков полного поглощения и оцененных дисперсий* (предполагается наличие прямолинейного фона)**

Условия для РО	Фон В	Дисперсия фона $S^2(B)$
Произвольное положение и ширина РО	$B = [Y(L_p) + Y(F_p)](N_p / 2),$ где $Y(L_p) = mL_p + b \text{ и } Y(F_p) = mF_p + b$ и где $m = (Y_h - Y_1) / (X_h - X_1)$, $b = (X_h Y_1 - X_1 Y_h) / (X_h - X_1)$	$S^2(B) = \left(\frac{N_p}{2}\right)^2 \left[K^2 \frac{B_h}{N_h^2} + (2-K)^2 \frac{B_1}{N_1^2} \right],$ где $K = \frac{2(X - X_1)}{(X_h - X_1)} = \frac{(F_p + L_p - 2X_1)}{(X_h - X_1)}.$
Симметричное расположение РО фона по отношению к РО пика, $(F_p - X_1) = (X_h - L_p)$	$B = (Y_1 + Y_h) \frac{N_p}{2} = \left(\frac{B_h}{N_h} + \frac{B_1}{N_1} \right) \frac{N_p}{2}$	$S^2(B) = \left(\frac{N_p}{2}\right)^2 \left(\frac{B_h}{N_h^2} + \frac{B_1}{N_1^2} \right)$
Симметричное расположение РО фона при $N_1 = N_h = N_c$	$B = \frac{N_p}{2N_c} (B_h + B_1)$	$S^2(B) = \left(\frac{N_p}{2N_c}\right)^2 (B_h + B_1)$
Симметричное расположение РО фона при $N_1 = N_h = N_p / 2$	$B = (B_h + B_1)$	$S^2(B) = (B_h + B_1) = B$

* $A = P - B$,

$$S^2(A) = P + S^2(B).$$

** Условные обозначения – см. рис. 5.11;

НЭ – низкая энергия;

ВЭ – высокая энергия;

 F_e, L_e – первый и последние каналы РО фона НЭ; F_p, L_p – первый и последние каналы РО пика; F_h, L_h – первый и последние каналы РО фона ВЭ; V_e, P, B_h – интегралы РО фона НЭ, пика и фона ВЭ; N_e, N_p, N_h – числа каналов в РО фона НЭ, пика и фона ВЭ; $Y_h = B_h / N_h$ – средний уровень фона в РО фона ВЭ; $Y_e = V_e / N_e$ – средний уровень фона в РО фона НЭ; X_h, x_e – центры фоновых РО; $Y(F_p)$ и $Y(L_p)$ – ординаты линии фона F_p и L_p ; m и b – наклон и пересечение линии фона между (X_e, Y_e) и (X_h, Y_h) .

5.3.8 Использование простых подгонок функций Гаусса для измерения площади пика

Как показано в разделе 5.1.3, получая значения параметров σ и y_0 с помощью подгонки функцией Гаусса, можно также определить площадь пика, используя уравнение (5.8). Для хорошо разрешенных пиков значения площадей, полученные с помощью подгонки простыми функциями Гаусса, вероятно, не точнее, чем значения площадей, полученные при суммировании в РО, и даже могут быть несколько хуже. Это утверждение, как известно, справедливо для германиевых детекторов. Для NaI сцинтилляторов подгонка функцией Гаусса может дать более согласующиеся площади пиков, чем методы суммирования в РО. Простые процедуры подгонки функциями Гаусса не обеспечивают простого способа оценки погрешности определения площади пика.

В некоторых ситуациях подгонка функцией Гаусса имеет преимущества. Когда два пика полностью не разрешены и нужные для пиков РО перекрываются, то для определения площадей пиков кривые Гаусса могут подгоняться к РО с шириной в одну FWHM с центром в каждом пике. Когда положение центроиды и значение FWHM являются главной информацией, которая получается при подгонке функцией Гаусса, оценка площади часто происходит без затруднений. Если пик имеет значительный низкоэнергетический хвост, обусловленный комптоновским рассеянием в образце или защите, простая подгонка функцией Гаусса в середине FWHM пика может легко определить желаемую площадь.

Когда функция Гаусса преобразуется в линейную, для получения параметров x_0 и σ подгонкой наименьших квадратов, параметр y_0 можно также определить, используя любые точки исходных данных и уравнение (5.6) для получения решения относительно y_0 . Среднее значение величины y_0 , определенное по нескольким точкам в окрестности x_0 , дает удовлетворительное значение для уравнения площади пика.

В разделе 5.1.9 было показано, что логарифм функции Гаусса является параболой, и что квадратичная подгонка к $\ln(y_i)$ дает все три параметра функции Гаусса x_0 , y_0 и σ . Площадь пика получается из уравнения (5.8). Для процедуры с использованием линеаризованной функции Гаусса не существует простых выражений для оценки погрешности площадей пиков.

5.3.9 Использование известных параметров формы для измерения площадей пиков в мультиплетах

В предыдущем разделе основное внимание было уделено хорошо разрешенным одиночным пикам, которые используются в большинстве задач НРА ядерных материалов. Однако для измерения изотопных отношений по спектру плутония высокого разрешения необходимо проанализировать неразрешенные мультиплеты пиков.

Если форма пика описывается адекватной математической моделью, в которой, за исключением амплитуды, все параметры известны, неразрешенные мультиплеты можно исследовать совсем просто — обычными неитерационными методами наименьших квадратов. В некоторых случаях подходит простая функция Гаусса (уравнение (5.6)) без каких-либо хвостовых членов. Если параметры положения x_0 и ширины σ известны, неизвестным является только параметр амплитуды y_0 . Часто хорошо разрешенные пики в спектре могут дать достаточную ин-

формацию для определения параметров x_0 и σ неразрешенных пиков. Значения энергии гамма-квантов всех делящихся изотопов известны достаточно точно, поэтому параметры энергетической градуировки могут быть определены с высокой точностью для вычисления параметра x_0 всех неразрешенных пиков. Параметр ширины σ можно определить из хорошо разрешенных пиков и эти значения использовать при интерполяции параметров ширины неразрешенных пиков, используя соотношение $FWHM^2 = a + bE$, которое является достаточно точным для германиевых детекторов и гамма-квантов с энергией выше 100 кэВ. Хорошо разрешенные пики могут также давать информацию, необходимую для определения параметров хвостовых членов в функции формы пика.

Процедуру подгонки наименьших квадратов при определении амплитуд пиков легко описать на следующем примере. Предположим, что существует мультиплет из трех пиков, все пики которого происходят от разных изотопов. После того, как под мультиплетом вычитается комптоновский фон, полученный спектр имеет только три перекрывающихся пика, и число отсчетов в i -м канале может быть записано как

$$y_i = A1 \times F1_i + A2 \times F2_i + A3 \times F3_i, \quad (5.51)$$

где $A1$, $A2$ и $A3$ являются амплитудами пиков, которые требуется определить, а $F1$, $F2$ и $F3$ являются функциями, описывающими формы пиков. Предположим, что все пики хорошо описываются чистыми функциями Гаусса:

$$\begin{aligned} F1 &= \exp[K1(x_i - x1_0)^2], \\ F2 &= \exp[K2(x_i - x2_0)^2], \\ F3 &= \exp[K3(x_i - x3_0)^2], \end{aligned} \quad (5.52)$$

где $x1_0$, $x2_0$, $x3_0$ — известные положения центроидов;

$$K1, K2, K3 = 1 / 2\sigma_{1,2,3}^2;$$

$$\sigma_i = (FWHM)_i / (2\sqrt{2 \ln 2}).$$

Процедура подгонки наименьших квадратов определяет значения $A1$, $A2$, и $A3$ из условия минимизации разности квадратов между действительными значениями спектра и значениями выбранной функции. Беря производные, получаем следующие выражения для $A1$, $A2$, и $A3$:

$$A1 = \frac{1}{D} \begin{vmatrix} \sum y F1 & \sum F1 F2 & \sum F1 F3 \\ \sum y F2 & \sum F2^2 & \sum F2 F3 \\ \sum y F3 & \sum F3 F2 & \sum F3^2 \end{vmatrix},$$

$$A2 = \frac{1}{D} \begin{vmatrix} \sum F1^2 & \sum y F1 & \sum F1 F3 \\ \sum F2 F1 & \sum y F2 & \sum F2 F3 \\ \sum F3 F1 & \sum y F3 & \sum F3^2 \end{vmatrix},$$

$$A_3 = \frac{1}{D} \begin{vmatrix} \sum F_1^2 & \sum F_1 F_2 & \sum y F_1 \\ \sum F_2 F_3 & \sum F_2^2 & \sum y F_2 \\ \sum F_3 F_1 & \sum F_3 F_2 & \sum y F_3 \end{vmatrix}, \quad (5.53)$$

$$D = \begin{vmatrix} \sum F_1^2 & \sum F_1 F_2 & \sum F_1 F_3 \\ \sum F_2 F_1 & \sum F_2^2 & \sum F_2 F_3 \\ \sum F_3 F_1 & \sum F_3 F_2 & \sum F_3^2 \end{vmatrix}.$$

Вид уравнений (5.53) можно распространить на дополнительные неизвестные. Форма функций F_1 , F_2 и F_3 не влияет на вид решения для A_1 , A_2 и A_3 . Существует только одно требование, чтобы функции были полностью определены, за исключением значений амплитуды. Для улучшения точности описания формы пиков могут быть добавлены составляющие функций, описывающие хвосты. Если в мультиплете два пика или более принадлежат одному изотопу, при подгонке пиков могут использоваться квантовые выходы I_1 , I_2 ... в качестве одной составляющей. Если один или два пика в мультиплете принадлежат одному изотопу, уравнение (5.51) преобразуется в уравнение

$$y_i = A \times F_{1i} + A_3 \times F_{3i}, \quad (5.54)$$

где $F = \exp[K_1(x_i - x_{1_0})^2] + (I_2 / I_1) \exp[K_2(x_i - x_{2_0})^2]$.

Уравнение (5.54) имеет только два неизвестных, A и A_3 . Строго говоря, коэффициенты в выражении для F должны быть равны $1/E_1$ и $I_2/I_1 E_2$, где E_1 и E_2 являются относительными эффективностями регистрации гамма-излучения двух энергий. Если возможно, значения эффективностей следует ввести в выражение, но часто соседние пики мультиплета так близки друг к другу по энергиям, что $E_1 \approx E_2$. Когда гамма-излучение одного из соседних пиков намного интенсивнее другого, погрешности для интенсивных пиков, вызванные предположением, что $E_1 = E_2$, обычно незначительны.

5.3.10 Использование сложных вычислительных программ для измерения площади пика

Было затрачено много усилий на разработку вычислительных программ для определения площадей пиков в сложных перекрывающихся мультиплетах. Существует ряд удачных вычислительных программ вместе со многими модификациями для конкретных задач. Хелмер и Ли [11] рассмотрели модели пиков и процедуры вычитания фона для большинства вычислительных программ, используемых в настоящее время.

Сложные вычислительные программы описывают пики полного поглощения базовой функцией Гаусса плюс один или два члена для описания низкоэнергетических хвостов (длинный и короткий хвосты), а также иногда плюс член для описания высокоэнергетического хвоста. Длинный хвост часто не включают в площадь пика полного поглощения потому, что он приписывается к комптоновскому рассеянию на малые углы внутри образца. Обычно для спектра высокого разре-

шения не требуется включения функции для описания длинного хвоста. Форма деталей хвостовых членов изменяется от программы к программе, хотя результаты часто получаются одинаковыми. Процедуры для вычитания комптоновского фона также различны; в основном, больше всего требуют улучшения процедуры вычитания фона.

Вычислительные программы подгонки часто необходимы, но для разумного использования обычно требуют больших усилий по изучению их работы. Изучение работы таких вычислительных программ подобно обучению игре на большом духовом органе; после овладения некоторыми основными навыками, каждый должен изучить возможности и ограничения многих комбинаций "регистров органа." Потенциальный пользователь, который не имеет значительного опыта в гамма-спектрометрии, должен консультироваться у более опытных пользователей вычислительных программ.

Отметим, что все вычислительные программы подгонки лучше работают с высококачественными спектрами хорошего разрешения и минимальными хвостами пиков. Вычислительные программы подгонки не могут полностью компенсировать низкое качество детектора и электроники или неудачные процедуры накопления данных. Образно говоря, грамм разрешения стоит килограмма вычислительной программы. За последние несколько лет качество детекторов и электроники улучшалось параллельно разработке вычислительных программ, что позволяет в настоящее время выполнять такие измерения, которые прежде были очень трудны или невозможны.

5.4 ПОПРАВКИ НА НАЛОЖЕНИЕ ИМПУЛЬСОВ И ПРОСЧЕТЫ

5.4.1 Введение

Как обсуждалось в главе 4, мертвое время аналогово-цифрового преобразователя (АЦП) определяется как сумма временных интервалов, в течение которых АЦП не способен обрабатывать другие события. Мертвое время может иметь место во всех компонентах систем неразрушающего анализа. Интервалы мертвого времени могут быть либо фиксированными, либо являться функцией параметров системы и амплитуды импульса.

Для систем на основе МКА мертвое время начинается, когда выходной импульс усилителя превосходит порог дискриминатора АЦП. Мертвое время включает время нарастания импульса, небольшое фиксированное время на регистрацию пика и блокировку, время преобразования к цифровому виду и часто время на пересылку информации в память. Для систем с германиевым детектором, использующих АЦП Уилкинсона с частотой 100 МГц, мертвое время для события в 4000 канале составляет ~ 55 мкс. При скорости счета всего в несколько тысяч импульсов в секунду значительная часть информации может быть потеряна только из-за мертвого времени системы.

Для систем на основе ОКА, использующих детекторы NaI(Tl), мертвое время много короче и часто им можно пренебречь. Потери в таких системах обычно обусловлены наложением импульсов.

Наложение импульсов кратко описано в главе 4. На рис. 4.9 показано, как два события, которые следуют друг за другом и разделены интервалом времени меньшим, чем ширина импульса усилителя, суммируются и дают импульс, амплитуда которого не пропорциональна ни одному из исходных импульсов. На рис. 4.10 показано искажение спектра вследствие наложения событий. Наложение может иметь место в детекторе, предусилителе или основном усилителе, но общий эффект определяется самой медленной составной частью, обычно — основным усилителем. Наложение всегда ведет к потере информации; степень потери зависит от рассматриваемой информации и общей скорости счета. Например, когда регистрируется число импульсов, превысивших порог дискриминатора, то два наложенных события считаются как одно; если же производится амплитудно-импульсный анализ, то оба события теряются из соответствующих пиков.

В спектрометрических системах высокого разрешения ширина импульса усилителя часто сравнима со временем обработки АЦП, и потеря информации, вызванная наложением импульсов, может быть равна или больше потерь, вызванных мертвым временем. Хотя МКА может работать в режиме живого времени и компенсировать потери, обусловленные мертвым временем, этот метод не является полной компенсацией потерь вследствие наложений.

Во многих работах все потери регистрации рассматриваются с точки зрения двух граничных случаев, каждый из которых обусловлен мертвым временем (см., например, главу 3 и работу [12]). Один из случаев, описывающих работу реального оборудования, называется "непарализуемым" мертвым временем и является типичной работой АЦП; другой — называется "парализуемым" мертвым временем и относится к наложению импульсов. Терминология является неудачной, поскольку схема не является мертвой в течение наложения импульсов; скорее события теряются из соответствующих каналов вследствие искажения импульса. В этой книге различие между мертвым временем и наложением сохраняется потому, что эти случаи являются двумя ясно различимыми механизмами потери.

Целью многих гамма-спектрометрических задач является вычисление скорректированной скорости счета (CR) для исследуемого гамма-излучения:

$$CR = RR \times CF(RL) \times CF(AT), \quad (5.55)$$

где RR — исходная скорость счета импульсов;

CF(RL) — коэффициент поправки на просчеты;

CF(AT) — коэффициент поправки на ослабление (см. главу 6).

Когда коэффициенты поправки определены правильно, CR соответствует скорости счета при отсутствии потерь в электронике и ослабления излучения в образце. Скорректированная скорость счета CR часто прямо пропорциональна измеряемой величине, такой как масса ^{239}Pu или обогащение ^{235}U . Для получения точных результатов анализа должны быть точно определены все три коэффициента в уравнении (5.55).

5.4.2 Зависимость просчетов от входной загрузки

В современных спектрометрических системах потери счета редко достаточно хорошо описываются с помощью простой модели "непарализуемого" мертвого времени; однако здесь эта модель приводится для завершенности описания. В ранних системах потери из-за мертвого времени были значительно выше, чем потери вследствие наложения импульсов, и простая "непарализуемая" модель была вполне приемлемой.

Для фиксированного мертвого времени D , величина CR может быть представлена следующим образом:

$$CR = \frac{RR}{1 - RR \times D} \quad (5.56)$$

Решая уравнение относительно RR , получаем

$$RR = \frac{CR}{1 + CR \times D} = \frac{1}{1/CR + D} \quad (5.57)$$

Когда $CR \rightarrow \infty$, $RR \rightarrow 1/D$, т.е. к предельному значению пропускной способности системы. Степень "непарализуемости" растет, потому что RR растет монотонно, стремясь к пределу $1/D$. Для потерь вследствие наложения $RR \rightarrow 0$, когда $CR \rightarrow \infty$, подтверждая термин "парализуемости".

Хотя АЦП Уилкинсона не имеет фиксированного мертвого времени, уравнения (5.56) и (5.57) применимы, если D установлено равным интервалу среднего мертвого времени. Значения либо фиксированного, либо среднего мертвого времени определяют редко потому, что большинство пользователей хотят корректировать объединенные потери в скорости счета импульсов.

Потери вследствие наложения импульсов важны для спектрометрии высокого разрешения по двум причинам. Во-первых, потому, что относительно длительные интервалы времени формирования импульса, которые требуются для оптимального отношения сигнал/шум, дают импульсы с шириной до 50 мкс, что увеличивает вероятность наложения. Во-вторых, потому, что небольшое искажение вследствие наложения может вывести импульс из узкого пика. Поскольку системы с NaI(Tl) работают с постоянными времени, равными ~ 3 мкс или менее, они имеют более низкие потери вследствие наложения. Более того, так как пики от детекторов NaI в 10–20 раз шире, чем пики от германиевых детекторов, многие события могут претерпевать слабые наложения, но все еще останутся внутри пика полного поглощения. Поэтому из-за большей ширины пиков потери вследствие наложения в спектрах от детекторов NaI труднее корректировать.

На рис. 5.13 показано, что амплитуда пика искажается, если два импульса следуют друг за другом в интервале времени, приблизительно равном половине ширины импульса. Степень искажения зависит от амплитуды и времени поступления интерферирующего импульса по отношению к анализируемому импульсу. При регистрации для предотвращения анализа искаженных событий часто используется цепь режекции наложений. К сожалению, вместе с режекцией некачественных импульсов почти все системы также отбраковывают и некоторую часть неискаженных импульсов.

Если внутри интервала времени T , в котором возможны наложения, отсутствуют другие события, импульс будет проанализирован и сохранен в соответствующей позиции. Фундаментальное выражение для статистик Пуассона [1,3], которое применяется в данном случае, имеет следующий вид:

$$P(N) = \frac{(RT)^N e^{-RT}}{N!}, \quad (5.58)$$

где $P(N)$ — вероятность N событий, которые происходят в интервале времени T , если средняя скорость счета равна R .

Выражение для вероятности того, что событие не будет потеряно вследствие наложения, получается, подставляя в уравнение (5.58) $N = 0$:

$$P(0) = e^{-RT}. \quad (5.59)$$

Доля потери импульсов F вследствие наложения выражается

$$F = 1 - P(0) = 1 - e^{-RT}. \quad (5.60)$$

Если значение RT много меньше 1, уравнение (5.60) упрощается до

$$F \approx RT. \quad (5.61)$$

Это выражение дает очень простое соотношение для оценки потерь вследствие наложения при низких скоростях счета.

Если потерями из-за мертвого времени можно пренебречь, уравнение (5.59) описывает пропускную способность спектрометрической системы высокого разрешения. Измеренная исходная скорость RR выражается

$$RR = R e^{-RT}, \quad (5.62)$$

где R является полной скоростью событий от детектора. Дифференцирование уравнения (5.62) показывает, что RR достигает максимума при $R=1/T$, и что часть от R , которая анализируется и запоминается при этой скорости, равна $1/e \approx 0,37$. Таким образом, при входной скорости с максимальной пропускной способностью свыше трети входных событий правильно регистрируются и запоминаются. Часть скорости входных импульсов, которая запоминается, составляет e^{-RT} , а регистрируемая скорость как часть максимальной регистрируемой скорости $1/(eT)$ определяется выражением $RT e^{-RT}$. Обе эти части нанесены на график на рис. 5.14.

5.4.3 Пропускная способность спектрометрических систем

Из рис. 5.14 видно, что степень пропускной способности ослабевает до неожиданно низких значений для обычных гамма-спектрометрических систем высокого разрешения. Для $T=50$ мкс (довольно высокая величина), $1/T=20\,000$ с⁻¹ и максимум пропускной способности приблизительно равен 7350 с⁻¹. Когда для получения требуемого разрешения необходимы большие постоянные времена, пропускной способностью приходится жертвовать в качестве расплаты за наилучшее разрешение. В действительности, когда это возможно, следует использовать сторону низких скоростей кривой пропускной способности, так как она дает лучшее разрешение и форму пика. При скорости счета $0,6$ ($1/T$) пропускная способность

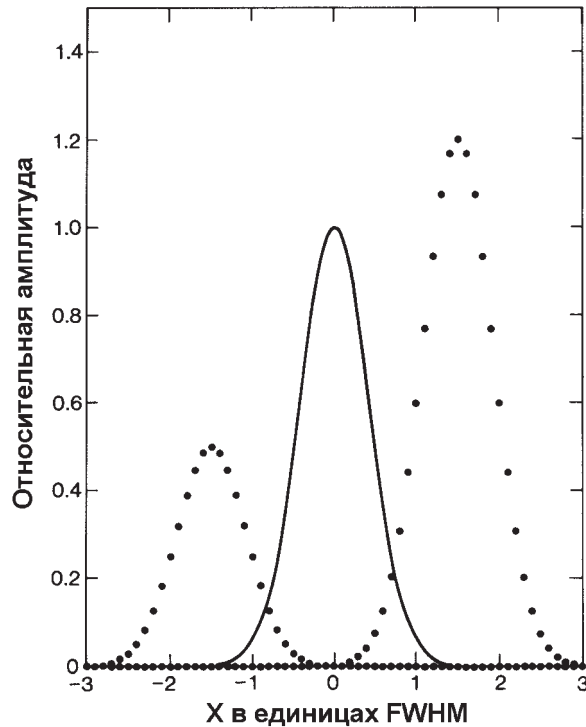


Рис. 5.13. Три кривых Гаусса (импульсы усилителя), которые расположены друг от друга на расстоянии $1,5 \times \text{FWHM}$. Как показано на рисунке, в каждом импульсе присутствует минимальное искажение вследствие наложения. Если расстояние между импульсами уменьшается, искажение заметно возрастает

равна 90 % от максимальной; при 0,5 ($1/T$) пропускная способность еще составляет 82 % от максимальной.

Иногда спектрометрическая система должна работать далеко от максимума пропускной способности. При скорости счета $2/T$ ($40\,000\text{ с}^{-1}$ при $T = 50\text{ мкс}$) запоминается только 14 % информации, допуская поправку потерь из-за наложений ~ 7 . Очевидно, что для максимизации пропускной способности системы и минимизации необходимой поправки, следует минимизировать T и допускать некоторую потерю в разрешении. К счастью, в последнее время достигнут большой прогресс в минимизации T при сохранении разрешения и формы пика (см. работу [13] и главу 4).

Если уравнения от (5.59) до (5.62) используются для оценки показателя пропускной способности и доли потерь, значения величин R и T должны быть довольно хорошо известны. Входную скорость счета R обычно легко получить. Многие современные усилители включают схемы для режекции наложения импульсов и имеют быструю синхронизацию канала с разрешением пары импульсов в районе от 0,5 до 1,0 мкс и выход, который может быть сосчитан с помощью счетчика-таймера. Для поправки значения R может быть использовано уравнение (5.56), когда существует значительная потеря при быстром определении канала. Для измерения высокой скорости счета к выходу предусилителя могут быть подсоединены

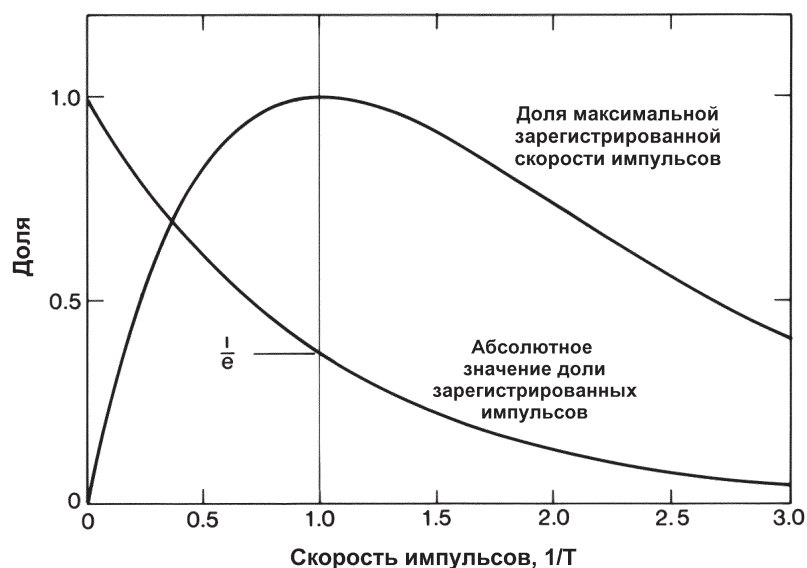


Рис. 5.14. Абсолютное значение доли зарегистрированных импульсов и доля максимальной зарегистрированной скорости импульсов для парализованной системы мертвого времени T в зависимости от входной скорости импульсов в единицах $1/T$

быстрые усилители и дискриминаторы. Для измерения R не должен использоваться выход ОКА в АЦП, так как он работает много медленнее, чем выход усилителя.

Интервал T режекции или потери оценить труднее. Если не используется электронная режекция наложения, то можно предположить, что T будет приблизительно равен ширине импульса (см. рис. 5.13). Можно использовать осциллограф для измерения ширины импульса с погрешностью до 1 или 2 %. Для многих усилителей ширина импульса составляет приблизительно шесть постоянных времени τ , но при этом обычно недооцениваются потери вследствие наложений. После того как импульс будет проанализирован и до того, как наступит следующее событие, сигнал на выходе усилителя должен стать меньше нижнего уровня дискриминатора АЦП. Так как уровень дискриминатора обычно низкий, последующий импульс, отстоящий от предыдущего менее, чем на полную ширину импульса, анализироваться не будет. Чтобы исключить этот эффект, значение T следует принимать равным приблизительно 1,5 значениям ширины импульса для системы без режекции наложений.

При использовании электронной режекции наложений их различные конфигурации могут иметь различные значения T . Одна процедура использует быструю схему счета времени для оценки интервалов между импульсами предусилителя, а также для выработки запрещающего сигнала, если интервал оказывается менее фиксированного значения. Длина интервала и запрещающего сигнала приблизительно равны ширине импульса усилителя. Запрещающий сигнал подается к воротам антисовпадений АЦП для того, чтобы блокировать анализ накладывающихся событий. Значение T зависит от требований к антисовпадениям АЦП;

обычно импульс отбраковывается, если внутри установленного интервала ему предшествует другой импульс или если другой импульс следует за ним до того, как закрываются линейные ворота АЦП, когда начинается преобразование в число. Очевидно, что для точной оценки значения T требуется хорошее понимание работы АЦП и цепи режекции наложений. Дополнительные потери, вызванные мертвым временем АЦП, часто могут быть проигнорированы. Например, если ширина импульса равна 35 мкс (соответствует использованию постоянной времени, равной ~ 6 мкс) и преобразование в число занимает 15 мкс или менее, начиная с момента, когда импульс падает до 90 % от своего максимального значения, то АЦП завершает преобразование в число и запоминание производится до того, как сигнал запрета наложения будет послан, и тогда АЦП не дает вклада в дополнительные потери.

Доля хорошей информации, которая запоминается, обычно несколько ниже, чем поступает на вход. Одной из причин этого является то, что цепь режекции наложений допускает анализ некоторой части наложенных событий, вызывая потерю хороших событий. Большинство цепей режекции наложений имеет разрешение для пар импульсов от 0,5 до 1,0 мкс. Импульсы, разделенные расстоянием меньшим, чем временное разрешение, будут накладываться, но все еще анализироваться, вызывая пики сумм в спектре. Когда используются постоянные времени усилителя ≥ 3 мкс, верхушки импульсов становятся почти плоскими на интервале в одну микросекунду и события внутри времени разрешения цепи наложения суммируются вместе почти полностью, формируя пики сумм, которые имеют почти ту же форму и ширину, что и настоящие пики. Такие пики имеют обыкновение появляться в сложных местах спектра и иногда ошибочно принимаются за одиночные пики гамма-излучения.

Другая причина потери информации обусловлена генерацией импульсов предусилителя с большим временем нарастания. Обычно время нарастания составляет несколько десятых микросекунды. Однако, если взаимодействие гамма-излучения происходит в той части детектора, где электрическое поле слабое, или там, где существует избыток ловушек, то для сбора освободившегося заряда может потребоваться несколько микросекунд. Тогда основной усилитель создаст очень длинные импульсы низкой амплитуды, часто в два или три раза длиннее нормальных. Хорошие события, которые суммируются с этими длинными импульсами низкой амплитуды, теряются в качестве полезной информации. Частота, с которой генерируются такие события, зависит от свойств детектора и от того, как он облучается гамма-излучением. Если гамма-излучение падает на края детектора, где поля часто искажены и являются слабыми, имеется большая вероятность неправильного сбора заряда. В некоторых случаях детектор на высоких скоростях работает лучше, если гамма-излучение может быть скользящим, чтобы попадать только в центральную часть детектора. Для относительно плохих детекторов при условиях облучения широким пучком до 10 % регистрируемых событий могут иметь большие времена нарастания и это приводит к существенным потерям информации. Для достижения высокой пропускной способности при повышенных нагрузках требуется отличный детектор, обеспечивающий минимум плохо собранных, медленно растущих импульсов.

Кривая пропускной способности может быть определена экспериментально с помощью подходящих источников и оборудования. На рис. 5.15 показана кривая пропускной способности для наилучшей гамма-спектрометрической системы, ра-

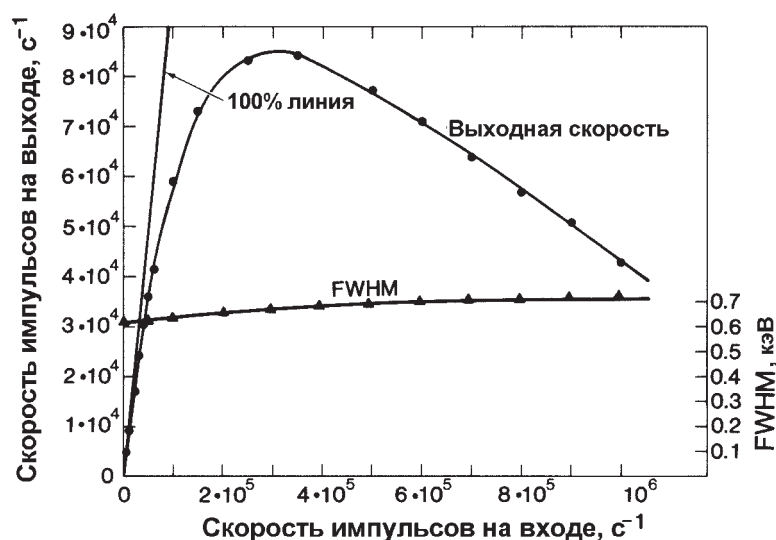


Рис. 5.15. Экспериментальные кривые пропускной способности и разрешения для наилучшей высокоскоростной гамма-спектрометрической системы. Прямая линия показывает 100 %-ную пропускную способность

ботающей на больших нагрузках с использованием временной модификации методики фильтрации (см. главу 4) для достижения очень высокой пропускной способности при почти постоянном разрешении. Используется маленький планарный германиевый детектор с источником ²⁴¹Am. Максимальная измеренная пропускная способность составляет ~ 85000 с⁻¹ при нагрузке ~ 300000 с⁻¹. Однако модель с «парализуемым» мертвым временем предсказывает максимальную пропускную способность 110000 с⁻¹ при нагрузке 300000 с⁻¹, т.е. простая модель не подходит. Разрешение системы при 60 кэВ почти постоянно и равно ~ 0,63 кэВ вплоть до скорости 100000 имп./с, затем оно медленно возрастает до ~ 0,72 кэВ при входной скорости 1000000 имп./с. На рис 5.16 показана кривая пропускной способности для ²⁴¹Am при использовании стандартной электроники высокого качества, которая оптимизирована для высокого разрешения при низких скоростях счета с постоянными формирования, равными 6 мкс, а также АЦП Уилкинсона на 100 МГц для получения 8192-канального спектра. Дополнительные потери происходят при установке в нуль импульсно-оптического предусилителя. Максимальная пропускная способность этой системы составляет только ~ 2800 с⁻¹, но разрешение для 60 кэВ составляет ~ 0,34 кэВ при самой низкой скорости счета и равно только ~ 0,44 кэВ при 21500 с⁻¹. Кривые пропускной способности и разрешения показывают, что с помощью наилучшей в настоящее время системы нельзя при высокой скорости счета одновременно получить высокую пропускную способность и наилучшее разрешение. FWHM возрастает приблизительно с коэффициентом 2 при переходе от системы, оптимизированной по разрешению, к системе, оптимизированной по высокой пропускной способности. Две экспериментальных кривых, хотя относятся к очень разным системам, похожи одна на другую и на теоретическую кривую, показанную на рис. 5.14 для полностью «парализуемой» системы.

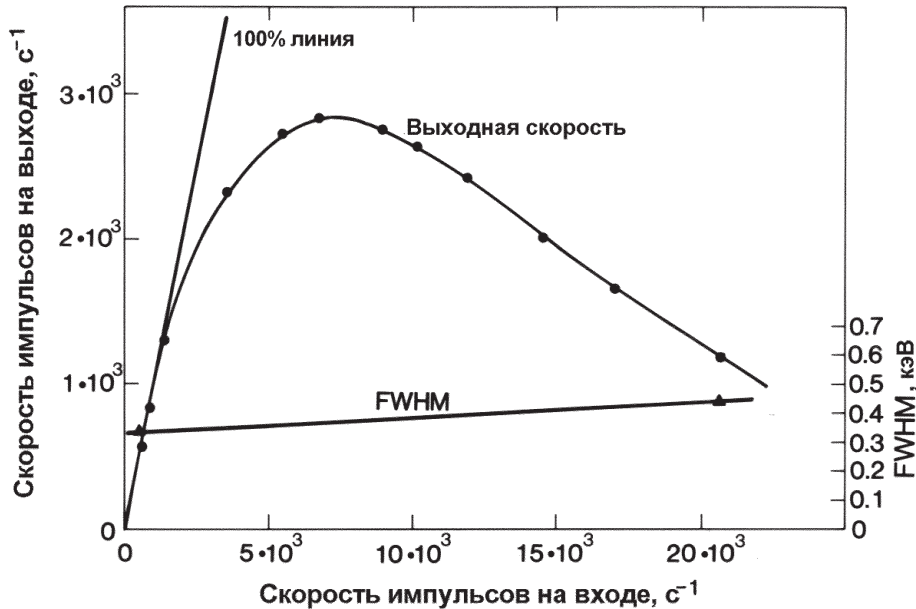


Рис. 5.16. Экспериментальные кривые пропускной способности и разрешения для стандартной гамма-спектрометрической системы, которая оптимизирована по разрешению за счет пропускной способности. Прямая линия показывает 100 %-ную пропускную способность

5.4.4 Методы введения поправок. Общие замечания

Определение скоростей счета в пике полного поглощения (FEIR) анализируемого гамма-излучения является основополагающим во многих процедурах НРА. Аналитики должны определить величину

$$FEIR = \frac{A(\gamma)}{TT} CF(RL), \quad (5.63)$$

где $A(\gamma)$ — площадь пика полного поглощения;
 TT — истинное время набора спектра;
 CF(RL) — коэффициент поправки на просчеты.

В этом разделе обсуждаются три класса процедур введения поправок. Для определения событий наложения первая процедура измерения интервалов между импульсами использует электронику быстрого измерения времени счета. Поправки выполняются с помощью увеличения времени счета или добавления отсчетов в спектр в течение набора. Вторая процедура заключается в добавлении искусственного пика в спектр путем подсоединения источника импульсов к предусилителю. Третья процедура использует источник гамма-излучения для создания пика поправки. Вторая и третья процедуры при расчете коэффициента поправки используют отклонения в площади пика, применяемого для поправки.

Все три метода исходят из предположения, что все пики подвержены одинаковым долям потерь из-за объединенных эффектов наложения и мертвого времени. Как правило, это предположение соответствует истине.

5.4.5 Методы введения поправки на наложения. Электроника

Методы, увеличивающие время счета, используют цепи быстрого счета, которые начинаются непосредственно с выхода предусилителя. Применяемые постоянные времена позволяют разделять соседние импульсы при расстоянии между ними от 0,5 до 1,0 мкс. Временное разрешение достигается за счет ухудшения энергетического разрешения так, что некоторые небольшие импульсы при анализе АЦП теряются в цепи измерения времени счета. Цепь не может ни регистрировать, ни корректировать события из-за наложения, когда интервал между ними меньше, чем время разрешения цепи, или когда одно из событий находится ниже временного порога обнаружения. Когда два или более событий расположены ближе друг к другу, чем выбранный порог режекции наложений, такие события не записываются, а время счета увеличивается для компенсации потерь.

Один метод продления времени счета заключается в генерировании интервала мертвого времени, который начинается, когда обнаруживается событие наложения, и оканчивается, когда обработано и зарегистрировано следующее хорошее событие; эта процедура дает приблизительную поправку. Процедура не может компенсировать необнаруженные события. Однако, при типичном периоде времени для ворот режекции, равном 20 мкс, и времени между соседними импульсами, которое составляет ~ 1 мкс, погрешность поправки будет составлять лишь несколько процентов. Для скоростей счета до нескольких десятков тысяч счетов за секунду, общая погрешность не будет превышать 1 %. Необходимые цепи режекции часто встраиваются в усилители спектрометров. Метод требует использования "живого" времени, так как время анализа не известно заранее. Метод также требует, чтобы скорость счета и форма спектра были неизменными в течение времени счета. Это ограничение несущественно для анализа долгоживущих нуклидов, но очень важно при активационном анализе очень короткоживущих нуклидов.

В последние годы требование активационного анализа к работе с высокими скоростями счета и быстро изменяющимися формами спектра привели к дальнейшим достижениям в области поправок на наложения и мертвое время. Такие системы сложны и только недавно появились в свободной продаже. Они могут работать при нагрузках порядка сотен тысяч импульсов в секунду и точно корректировать потери, превышающие 90 %. Способность корректировать потери на мертвое время и наложения при высоких скоростях может потенциально повысить скорость выполнения некоторых процедур НРА.

5.4.6 Введение поправок на мертвое время и наложения импульсов с помощью генератора импульсов

Метод генератора импульсов используется для введения искусственного пика в накапливаемый спектр; он имеет множество вариантов в зависимости от типа используемого генератора. Большинство предусилителей для германиевых и кремниевых детекторов имеют вход "КОНТРОЛЬ", через который могут быть введены импульсы подходящей формы. Эти импульсы претерпевают такие же потери вследствие мертвого времени и наложений, как импульсы, возникающие при регистрации гамма-квантов, и формируют пик, подобный пику гамма-излучения. Пик генератора импульсов имеет лучшее разрешение и форму, чем пики гамма-излучения потому, что он не расширяется из-за статистических

процессов, имеющих место при регистрации гамма-излучения. Площадь пика генератора импульсов определяется таким же образом, что и площадь пика гамма-излучения. Число импульсов, вводимых в предусилитель, легко определяется непосредственным счетом или из частоты генератора импульсов и времени накопления.

Преимуществом метода генератора импульсов является то, что искусственный пик обычно может быть расположен так, чтобы избежать интерференции с пиками гамма-излучения. Кроме того, поскольку все события генератора импульсов относятся к полному поглощению энергии, генерируется минимальное дополнительное мертвое время и наложения. С другой стороны, трудно найти генераторы импульсов с требуемой стабильностью амплитуды, способностью формирования импульса нужной формы и регулируемой частотой.

Другой общей проблемой является трудность введения импульсов через предусилитель без некоторого "недолета" в выходном импульсе. Длинный "недолет" нежелателен, поскольку импульсы гамма-излучения могут накладываться на "недолет" подобно тому, как они накладываются на положительную часть импульса. Нуль усилителя не может одновременно компенсировать различные постоянные спада генератора импульсов и импульсов гамма-излучения, поэтому компенсирующие системы редко используются на входе "КОНТРОЛЬ" из-за вероятного ухудшения в разрешении. Проблема "недолета" может быть минимизирована за счет использования длительного времени спада у импульса от генератора импульсов (часто порядка одной миллисекунды) и более короткой постоянной времени. Для минимизации проблемы схемы "полюс-ноль" обычно требуется некоторая жертва в отношении общего разрешения.

Простейший подход заключается в использовании обычного генератора импульсов с фиксированным периодом, в котором интервал между импульсами является постоянной величиной, равной обратной величине скорости счета импульсов. Лучшая стабильность амплитуды достигается от генератора импульсов с ртутным переключателем, в котором емкость заряжается и разряжается через цепь сопротивлений с помощью ртутного механического переключателя, который, однако, ограничивает полезную скорость таких генераторов до ≤ 100 Гц.

Предполагая, что пики генератора и пики гамма-излучения теряют некоторую часть событий из-за мертвого времени и наложений, соответствующий коэффициент поправки равен

$$CF(RL) = N / A(P), \quad (5.64)$$

где N — число (скорость счета) вводимых импульсов;

$A(P)$ — площадь (скорость счета для площади) пика генератора импульсов.

$CF(RL)$ имеет минимальное значение равное 1,00 и является обратной величиной от доли событий, накопленных в пике.

Уравнение (5.64) не совсем верно, поскольку импульсы генератора никогда не теряются ни в результате собственного мертвого времени, ни в результате наложений, ни чего-либо другого. Таким образом, общие потери для гамма-излучения больше, чем потери пика генератора, хотя разница очень мала. При средней скорости потери из-за мертвого времени и наложения почти независимы и

CF(RL) может быть скорректирован для получения более точного результата с помощью двух перемножаемых коэффициентов:

$$CF(RL) = \frac{N}{A(P)}(1 + RT_D)(1 + RT), \quad (5.65)$$

где R — частота импульсов генератора;
 T_D — мертвое время для импульса генератора;
 T — интервал наложения.

Мертвое время T_D можно достаточно хорошо оценить по быстродействию АЦП, а для АЦП Уилкинсона — по положению пика генератора. Интервал T обычно равен от 1,5 до 2 значений ширины импульса. Если $R \leq 100$ Гц, оба коэффициента обычно малы. Если принять типичное значение для обеих величин T_D и T , равное 20 мкс, то значение каждого дополнительного коэффициента равно 1,002, поэтому увеличение в CF(RL) составит всего ~ 0,4 %. Если используются большие величины R , T_D или T , поправки будут иметь большие значения. Если для более быстрого получения высокой точности R увеличивается до 1000 Гц, дополнительные факторы доводят разницу до нескольких процентов.

Беспокойство о точности анализа приводит к довольно любопытному, но полезному свойству периодических генераторов импульсов. Точность пика генератора определяется другим соотношением, чем точность пиков гамма-излучения. Точность пика генератора на самом деле всегда выше, чем точность пика гамма-излучения той же площади потому, что испускание гамма-квантов случайно, а производство импульсов генератором — нет. Точность площадей пиков гамма-излучения подчиняется статистике Пуассона, в то время как точность пиков импульсного генератора подчиняется, главным образом, биномиальной статистике.

Полагая, что фон под пиком генератора незначителен, и что площадь пика равна P , дисперсия и относительная дисперсия величины P определяются как

$$\begin{aligned} S^2(P) &= P(1 - P/N), \\ S_r^2(P) &= \frac{1}{P}(1 - P/N), \end{aligned} \quad (5.66)$$

где N — общее число импульсов, введенных в спектр.

Предполагая опять, что комптоновский фон незначителен, дисперсия и относительная дисперсия пика гамма-излучения площади A определяются выражениями:

$$\begin{aligned} S^2(A) &= A, \\ S_r^2(A) &= 1/A. \end{aligned} \quad (5.67)$$

На рис. 5.17 представлен график $S_r(P)$ от P для нескольких выбранных значений P/N , который показывает, что для $P/N \approx 0,5$ наблюдается совсем незначительное улучшение точности.

Когда пик генератора находится на значительном по величине фоне, вид выражения для $S(P)$ будет более сложным из-за случайной природы фона. Пик генератора следует располагать на той части спектра, которая имеет низкий фон (обычно в области высоких энергий) так, чтобы можно было достичь улучшенной точности и использовать уравнение (5.66).

Использование пика от генератора импульсов в области высокой энергии может усложнить минимизацию "недолета". Альтернативным подходом является

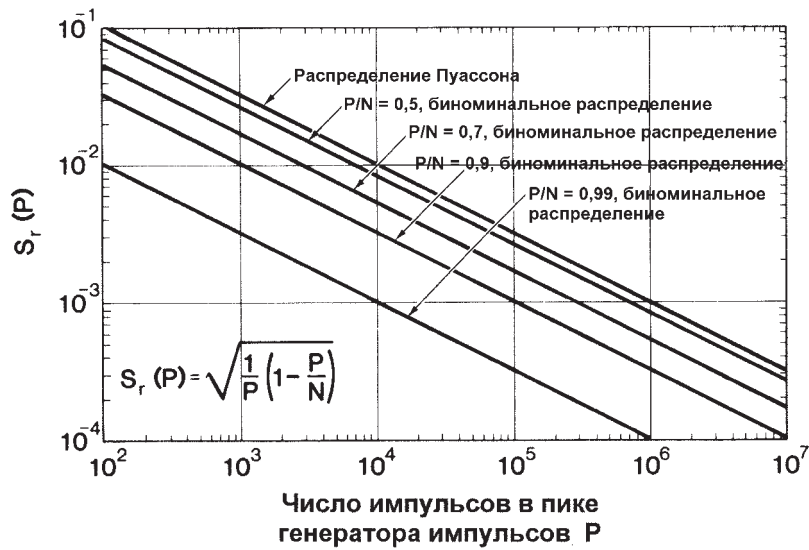


Рис. 5.17. Относительное стандартное отклонение $S_r(P)$ площади пика генератора импульсов P в зависимости от P для нескольких значений отношения P/N , где N — общее число набранных в спектре импульсов

использование прямоугольного импульса, который длиннее, чем выходной импульс усилителя; тогда исчезает проблема схемы "полюс-ноль" и отсутствуют мелкие "недолеты". Взамен генерируется отрицательный импульс как падение напряжения на выходе генератора. Другие события накладываются на отрицательный импульс, но он четко определяется и ведет к исключению событий наложения из их пика. Дополнительный коэффициент для потерь из-за наложений может быть записан как $(1+2RT)$.

Если бы имелись подходящие генераторы случайных импульсов, CF(RL) определялся бы просто уравнением (5.64). К сожалению, генераторы случайных импульсов успешно использовались только в исследовательских лабораториях, аналогичных коммерческих приборов нет. Одновременно трудно достигнуть требуемой стабильности амплитуды, случайного распределения интервала и постоянной средней скорости, которые требуются в практических задачах анализа гамма-излучения.

Поправки на мертвое время и наложения на основе импульсного генератора точны только тогда, когда и скорость счета, и форма спектра не изменяются в течение всего времени измерения. Когда скорость счета изменяется в течение времени измерения, правильная поправка не может быть выполнена, если генератор импульсов работает при фиксированной частоте. В принципе, поправка может быть выполнена при использовании генератора, работающего с частотой, которая является функцией общей скорости счета детектора. Были разработаны и успешно используются генераторы, основанные на этом принципе [14]. Такие генераторы используются в активационном анализе, при определении периодов полураспада, в экспериментах на ускорителях и везде, где могут встретиться изменяемые скорости счета при постоянной форме спектра. Использование генераторов импульсов с изменяемой частотой показывает разнообразие и мастерство, с кото-

рым применялись фундаментальные идеи введения в спектр искусственного пика для решения проблемы поправки на мертвое время и наложения.

5.4.7 Метод образцового источника для введения поправок на мертвое время и наложения

Большинство точных методов измерения поправки на мертвое время и наложения используют образцовый источник, установленный в фиксированном положении по отношению к детектору. Источник обеспечивает постоянную скорость взаимодействия гамма-излучения в детекторе. Пик стандартного источника выполняет такую же функцию, что и пик генератора импульсов.

Подобно другим методам, метод образцового источника исходит из предположения, что все пики подвержены одинаковым относительным потерям вследствие мертвого времени и наложений. При этом отношение площади любого пика к площади пика стандартного источника не зависит от таких потерь. Пусть $A(\gamma)$ и $FEIR(\gamma)$ представляют, как обычно, площадь пика полного поглощения и скорость счета в пике полного поглощения энергии для любого гамма-излучения, отличного от гамма-излучения образцового источника R . Если F является общей накопленной частью, а TT равно реальному времени накопления, то площади равны

$$\begin{aligned} A(\gamma) &= F \times FEIR(\gamma) \times TT, \\ A(R) &= F \times FEIR(R) \times TT. \end{aligned} \quad (5.68)$$

Отношение двух выражений дает

$$A(\gamma) / A(R) = FEIR(\gamma) / FEIR(R), \quad (5.69)$$

которое не зависит ни от F , ни от TT . Анализ гамма-излучения часто основан непосредственно на отношениях $A(\gamma)/A(R)$, которые не зависят от потерь, без определения в явном виде $CF(RL)$ или $FEIR(\gamma)$.

Для гамма-излучения образцового источника коэффициент поправки определяется как

$$CF(RL) = FEIR(R) \times TT / A(R). \quad (5.70)$$

Объединение этого выражения с уравнением (5.63) дает:

$$FEIR(\gamma) = \frac{A(\gamma)}{A(R)} FEIR(R), \quad (5.71)$$

которая не зависит от времени счета. Уравнение (5.55) для откорректированной скорости счета CR может теперь быть записано в виде

$$CR(\gamma) = FEIR(\gamma) \times CF(AT) = \frac{A(\gamma)}{A(R)} FEIR(R) \times CF(AT). \quad (5.72)$$

Величина $CR(\gamma)$ не зависит от реального времени измерения, хотя очевидно, что точность этой величины зависит от этого времени.

Если аналитические системы отградуированы с помощью образцовых источников, нет необходимости знать $FEIR(R)$ для получения точных результатов анализа. Во многих процедурах анализа искомая величина M (масса изотопа или элемента)

пропорциональна $CR(\gamma)$. В уравнениях с (5.73) по (5.75) величина K является градуировочной постоянной, индекс s обозначает характеристики, относящиеся к эталонам, а индекс u обозначает характеристики, относящиеся к неизвестным образцам:

$$M_u = \frac{CR(\gamma)_u}{K} = \frac{[A(\gamma)_u / A(R)_u] FEIR(R) \times CF(AT)_u}{K}. \quad (5.73)$$

Градуировочная постоянная может определяться по одному источнику:

$$K = \frac{CR(\gamma)_s}{M_s} = \frac{[A(\gamma)_s / A(R)_s] FEIR(R) \times CF(AT)_u}{M_s}. \quad (5.74)$$

Объединение уравнений (5.73) и (5.74) дает

$$M_u = \frac{[A(\gamma)_u / A(R)_u] CF(AT)_u}{[A(\gamma)_s / A(R)_s] CF(AT)_s} M_s, \quad (5.75)$$

которая не зависит от величины $FEIR(R)$.

Хотя точное знание величины $FEIR(R)$ не является необходимым, полезно получить приблизительные значения величин $FEIR(\gamma)$, $FEIR(R)$ и $CF(RL)$, чтобы действительные скорости накопления данных были известны вместе с частью информации, теряющейся из-за мертвого времени и наложений. Наличие градуировочной постоянной, выраженной в виде откорректированного числа отсчетов за секунду для единицы массы, может быть полезным при оценке требуемых времен анализа.

Достаточно точное значение величины $FEIR(R)$ может быть получено путем регистрации в живом времени излучения от одного образцового источника и оценки поправки на потери из-за наложения. Более точные значения поправок на потери из-за мертвого времени и наложения могут быть получены с помощью генератора импульсов.

Метод образцового источника может быть применен для любой спектрометрической системы без дополнительной электроники. Метод лишен проблем, вызванных введением импульсов генератора в предусилитель и смещением стандартного пика по отношению к пикам гамма-излучения. Он также не требует дополнительных поправок, которые необходимы при использовании генератора с фиксированной частотой. Кроме того, отсутствует погрешность вследствие конечного временного разрешения между соседними пиками, и пик образцового источника всегда имеется в распоряжении для проведения цифровой стабилизации и для выбора характеристик системы.

Главным значительным ограничением этой процедуры является то, что не всегда имеется в распоряжении образцовый источник с подходящим периодом полураспада и энергией. Дополнительным ограничением является то, что образцовый источник должен иметь значительную активность, что вызывает дополнительные потери и приводит к ухудшению общей точности, которая достижима для того же времени счета с другими методами. Метод образцового источника так же, как более простой метод генератора импульсов, применим только тогда, когда скорость счета и форма спектра постоянны.

Образцовый источник должен иметь большой период полураспада и интенсивное гамма-излучение в чистой части спектра. Энергия гамма-излучения об-

разцового источника должна быть ниже, но относительно близка к энергии анализируемых гамма-излучений, чтобы не добавит фона под анализируемые пики. Применение моноэнергетического образцового источника ограничивает рост на больших скоростях счета и общие потери из-за мертвого времени и наложений. Мало источников отвечают всем требованиям, но некоторые соответствуют требованиям для многих задач.

Для анализа ^{239}Pu , основанного на гамма-излучении с энергией 413,7 кэВ, самым полезным источником является ^{133}Ba . Гамма-излучение с энергией, равной 356,0 кэВ, не подвержено интерференции ни с одним из гамма-излучений плутония или америция, и оно находится на расстоянии не более 60 кэВ от анализируемой энергии. Очень удобен период полураспада, составляющий 10,3 года. Хотя ^{133}Ba испускает и другие гамма-кванты, их энергии находятся ниже 414 кэВ.

Для анализа плутония, когда требуется использование гамма-квантов более низких энергий, полезным образцовым источником является ^{109}Cd . Его гамма-линия с энергией 88,0 кэВ является единственным значимым излучением, за исключением рентгеновского излучения ^{109}Ag от захвата электрона с энергией ~ 25 кэВ, которое легко удаляется с помощью тонкого фильтра. Его период полураспада ~ 453 дней отвечает требованию применения в течение года или двух до замены. Хотя для нуклидов плутония и америция отсутствуют интерферирующие пики гамма-излучения, существует возможность интерференции с рентгеновским излучением свинца, который используется для защиты детектора. Линия $K_{\beta 2}$ -рентгеновского излучения свинца попадает непосредственно в область пика гамма-излучения ^{109}Cd с энергией 88,0 кэВ. Интерференции можно избежать, обернув детектор кадмием для поглощения рентгеновского излучения свинца и используя достаточно мощный ^{109}Cd источник, который подавит любое остаточное прохождение рентгеновского излучения свинца. Кроме того, если можно использовать разнообразные защитные материалы (например, сплав железа и вольфрама), то проблема исчезает.

Для анализа ^{235}U часто используется гамма-излучение ^{57}Co с энергией 122,0 кэВ. Его период полураспада, равный 271 дню, вполне подходит, хотя он не такой длительности, как можно было бы желать. Гамма-излучение с энергией 122,0 кэВ приблизительно в восемь раз интенсивнее гамма-излучения с энергией 136,5 кэВ и является единственным из других гамма-излучений, которое имеет значимую интенсивность. Заметим, что при использовании ^{57}Co для анализа образцов урана высокого обогащения, гамма-излучение ^{234}U с энергией 120,9 кэВ может быть досадной помехой. Эту проблему можно исключить, используя фильтр, который снижает интенсивность излучений с энергиями, более низкими по сравнению с излучением с энергией 185,7 кэВ, и достаточно сильный источник ^{57}Co , чтобы превысить остаточный сигнал от ^{234}U .

Часто для анализа урана или других элементов в качестве образцового источника используют ^{241}Am . Хотя гамма-излучение ^{241}Am с энергией 59,5 кэВ находится дальше от 186 кэВ, чем хотелось бы, его можно использовать, особенно, если приняты меры к снижению разницы в разрешении. Период полураспада, составляющий 433,6 года, не требует поправок. Чтобы использовать для анализа этот источник, америций-241 должен полностью отсутствовать в любых анализируемых материалах. Иногда в качестве источника излучения в плотном материале или для количественного анализа ^{235}U используется ^{169}Yb . Дочерние нуклиды иттербия испускают рентгеновское излучение, которое непосредственно интерферирует с

гамма-излучением с энергией 59,5 кэВ, но любую возможную проблему можно решить за счет достаточной фильтрации вместе с выбором подходящей интенсивности источника.

Современные методы определения поправок на мертвое время и наложения предполагают, что все пики полного поглощения подвержены одинаковым относительным потерям. Это предположение не совсем верно, главным образом потому, что ширина и форма пика являются функциями и энергии, и скорости счета импульсов. Применяя метод образцового источника, должны быть предприняты меры предосторожности для минимизации числа нарушений этого предположения. Ниже приводятся четыре таких предосторожности, большинство из которых применяются в любом методе определения поправок:

- когда это возможно, применять процедуру только в узком энергетическом диапазоне;
- поддерживать постоянными, насколько это возможно, ширину пика и форму относительно энергии и скорости счета, даже если это слегка ухудшит разрешение на низких скоростях и при низкой энергии. Правильная регулировка усилителя и режекция наложений могут в этом существенно помочь;
- избегать выпуклой или вогнутой формы комптоновского фона под важными пиками, особенно под пиком образцового источника. Если возможно, соотношение площади пика образцового источника к площади фона должна быть ≥ 10 ;
- уделять больше внимания определению площадей пиков. Методы выбора РО могут быть менее чувствительны к небольшим изменениям формы пика, чем методы подгонки спектров.

Экспериментальные результаты показывают, что метод образцового источника может корректировать потери из-за мертвого времени и наложений с погрешностью около 0,1 % в широком диапазоне скорости счета. Такие погрешности могут быть также достигнуты с помощью метода генератора импульсов, особенно при низких скоростях, и с помощью некоторых чисто электронных методов. Однако оборудование, которое требуется для чисто электронных методов, очень сложное.

5.5 ЭФФЕКТЫ ЗАКОНА ОБРАТНОГО КВАДРАТА

Полная эффективность регистрации детектора изменяется приблизительно как обратная величина квадрата расстояния между детектором и источником гамма-излучения. Рассмотрим точечный источник, испускающий I гамма-квант в секунду. Поток F гамма-квантов на расстоянии R определяется как число гамма-квантов в секунду, проходящих через единицу площади сферы с радиусом R и центром, совпадающим с положением источника. Так как площадь сферы равна $4\pi R^2$, выражение для F имеет следующий вид:

$$F = \frac{I}{4\pi R^2}. \quad (5.76)$$

Скорость счета детектора пропорциональна случайному потоку, и если поверхность детектора может быть аппроксимирована частью сферической поверх-

ности с центром в точке расположения источника, скорость счета имеет аналогичную потоку зависимость, т.е. $1/R^2$. Когда регистрируется низкоинтенсивное излучение от образца, желательно уменьшить расстояние образец-детектор и увеличить скорость счета. К сожалению, когда расстояние образец-детектор настолько мало, что для разных частей образца заметно различие в расстояниях до детектора, то и скорости счета от различных частей образца значительно отличаются. Это различие расстояний может вызвать погрешность в результатах анализа, когда распределение излучающего материала в образце неравномерно.

Общая скорость счета от образцов конечных размеров не подчиняется простому закону: обычно отклонение менее сильное, чем $1/R^2$. Несколько простых случаев могут помочь оценить общие скорости счета и неравномерность отклика.

Простейшим примером такого источника является линейный источник, который часто является подходящей моделью трубы, по которой прокачиваются радиоактивные растворы. Рассмотрим идеальный точечный детектор с собственной эффективностью ϵ , расположенный на расстоянии D от неограниченно длинного источника интенсивности I на единицу длины (рис 5.18). Скорость счета от этого источника может быть выражена как

$$CR = 2 \int_0^{\infty} \frac{I\epsilon}{r^2 + D^2} dr = \frac{\pi I\epsilon}{D}. \quad (5.77)$$

В этом идеальном случае зависимость скорости счета скорее $\propto 1/R$, чем $1/R^2$. Когда трубы измеряются на расстояниях меньших, чем их длина, изменение скорости счета приблизительно пропорционально $1/R$.

Скорость счета от точечного детектора, расположенного на расстоянии R от плоской бесконечной поверхности, совсем не зависит от R . Для детектора, расположенного близко к однородно загрязненной стене перчаточного бокса, скорости счета изменяются очень мало с изменением расстояния стена-детектор.

Должно быть минимизировано изменение отклика, связанное с изменением распределения материала внутри образца. Расстояние образец-детектор может быть увеличено, но расплатой являются большие потери в скорости счета. Лучшей стратегией является вращение образца. Рассмотрим поперечное сечение цилиндрического образца с радиусом R , центр которого находится на расстоянии D от детектора (рис. 5.19). Пока D незначительно превышает R , скорости счетов для идентичных источников, расположенных в точках 1, 2, 3 и 4, изменяются заметно. На рисунке показано, что если $D = 3R$, максимальное отношение скоростей счета $CR(2)/CR(4)=4$. Отношение отклика при вращении источника по окружности радиуса R к отклику для центра (положение 1 на рис. 5.19) определяется по формуле

$$\frac{CR(R)}{CR(1)} = \frac{1}{1 + (R/D)^2}. \quad (5.78)$$

Отклик будет тем же самым, что и отклик, полученный для однородного непоглощающего круглого источника с радиусом R , центр которого расположен на расстоянии D от детектора. В табл. 5.6 представлены значения этой функции для нескольких значений R/D , а так же для сравнения $CR(2)/CR(1)$ для невращающегося источника на рис. 5.19. Отклонение отклика даже больше, если принимать

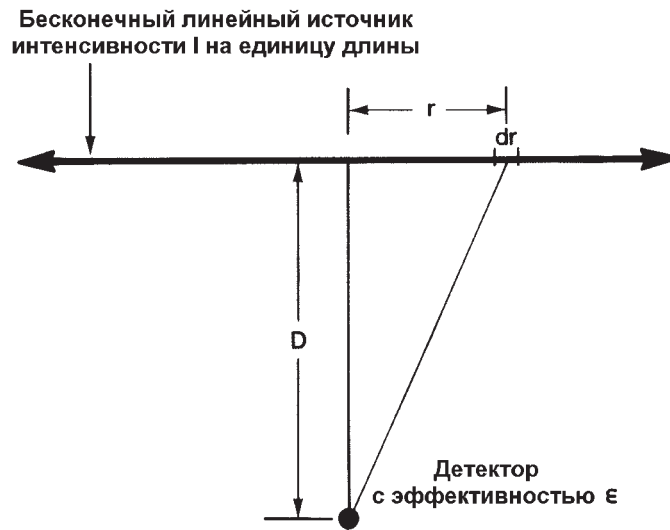


Рис. 5.18. Геометрия для расчета отклика точечного детектора при линейном источнике

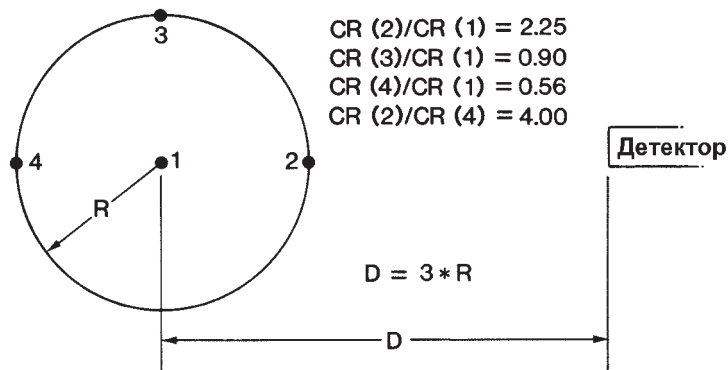


Рис. 5.19. Поперечное сечение цилиндрического образца и точечного детектора. Рисунок показывает изменение скорости счета с изменением положения источника

во внимание поглощение. Вращение только уменьшает эффекты $1/R^2$; оно не уничтожает полностью этот эффект.

Вращение уменьшает отклонения отклика, вызванные расположением источника по радиусу, но практически не позволяет компенсировать большие отклонения. Если высота источника не превышает одной трети расстояния образец-детектор, уменьшение в отклике составляет менее 10 % по сравнению с нормальным положением.

Таблица 5.6 – Влияние простого вращения на изменение скорости счета

R/D	CR(R)/CR(1) (вращение)	CR(2)/CR(1) (нет вращения)
1/2	1,33	4,0
1/3*	1,125	2,25
1/4	1,067	1,78
1/5	1,042	1,56
1/6	1,029	1,44
1/7	1,021	1,36

* См. рис. 5.19.

Выбор расстояния образец-детектор является компромиссом между минимизацией отклонений отклика и поддержкой достаточной скорости счета. Полезной информацией является то, что отклонение максимума скорости счета составляет менее 10 %, если расстояние образец-детектор равно утроенному значению большей из величин — радиус образца или половина высоты. Если образец не может вращаться, очень полезно измерять его в двух позициях с поворотом на 180°.

5.6 ИЗМЕРЕНИЯ ЭФФЕКТИВНОСТИ ДЕТЕКТОРА

5.6.1 Абсолютная эффективность регистрации пика полного поглощения

Абсолютная эффективность регистрации пика полного поглощения представляет собой долю гамма-квантов, зарегистрированных в пике полного поглощения, от потока гамма-квантов, испущенных точечным источником на конкретном расстоянии источник-детектор. Эта эффективность определяется в виде функции от энергии. Эта функция получается с помощью измерения эффективности для ряда энергий, а затем подгонки соответствующей функции к экспериментальным точкам:

$$\epsilon_A(\gamma) = FEIR(\gamma) / ER(\gamma), \quad (5.79)$$

где ϵ_A — абсолютная эффективность регистрации пика полного поглощения;
 $ER(\gamma)$ — скорость испускания гамма-квантов.

Определение величины FEIR описывается в разделе 5.4. Для детекторов с высоким разрешением необходимы поправки на потери вследствие наложений и мертвого времени. Для сцинтилляторов с низким разрешением поправками из-за наложений обычно пренебрегают.

Градуировочные источники для проведения абсолютных градуировок имеются у ряда поставщиков. Есть свидетельства трудности измерения точных скоростей счета излучения, поэтому приводимые в литературе погрешности нахо-

дятся в интервале между 0,5 и 2,0 %. В табл. 5.1 приведен список нескольких источников моноэнергетического гамма-излучения. Многоизотопные многоэнергетические источники, такие как источник Национального бюро стандартов США типа SRM-4275 (см. раздел 5.1.1), удобны для градуировки детекторов с высоким разрешением. Этот источник может быть использован в течение нескольких лет и перекрывает энергетический диапазон, наиболее часто используемый в НРА.

Часто в каскадных переходах между энергетическими уровнями одного возбужденного ядра испускаются два или более гамма-кванта. Так как интервал времени между испусканием таких каскадных гамма-квантов очень мал по сравнению со временем сбора заряда в германиевых, кремниевых или NaI-детекторах, с мультиплетным гамма-излучением обращаются, как с одиночным взаимодействием. Этот суммарный каскад может внести в измеряемые значения FEIR погрешности при вычитании или суммировании. Проблема важна, когда источник расположен так близко к детектору, что вероятность регистрации двух или более каскадных гамма-квантов очень велика. Если для повышения чувствительности приходится использовать очень короткие расстояния источник-детектор, необходимо очень внимательно рассматривать проблемы каскадного суммирования. Сопроводительная информация для источника SRM-4275 содержит подробное обсуждение этой проблемы, а так же другие возможные трудности, связанные с использованием многоэнергетических гамма-источников.

5.6.2 Собственная эффективность регистрации пика полного поглощения энергии

Собственная эффективность регистрации пика полного поглощения равна вероятности потери гамма-квантом всей своей энергии, если он попадает в объем детектора. Абсолютная эффективность регистрации пика полного поглощения ϵ_A и собственная эффективность регистрации пика полного поглощения ϵ_I связаны простым уравнением

$$\epsilon_A = \frac{\Omega}{4\pi} \epsilon_I, \quad (5.80)$$

где Ω является телесным углом детектора по отношению к источнику, а $\Omega/4\pi$ есть вероятность того, что гамма-квант попадет в объем детектора. Собственная эффективность регистрации пика полного поглощения определяется экспериментально с помощью измерения абсолютной эффективности регистрации пика полного поглощения и решения уравнения (5.80) для ϵ_I . Вычисляемое значение величины ϵ_I слабо зависит от положения источника по отношению к детектору.

При вычислении телесного угла Ω необходима определенная осторожность, особенно, если детектор имеет необычную форму или не расположен на оси симметрии. На рис. 5.20 показан точечный источник, расположенный на расстоянии D от лицевой стороны цилиндрического детектора радиуса R . Правильным выражением для телесного угла детектора относительно источника является

$$\Omega = 2\pi \left[1 - \left(\frac{D}{\sqrt{D^2 + R^2}} \right) \right], \quad (5.81)$$

где $D / \sqrt{D^2 + R^2} = \cos \Theta$;

Θ — телесный угол, показанный на рис. 5.20.

Однако для круглого детектора часто используется приближительное выражение:

$$\Omega \approx A / D^2 = \pi R^2 / D^2, \quad (5.82)$$

где A является площадью лицевой стороны детектора. Первое выражение в уравнении (5.82) может быть применено даже тогда, когда поперечное сечение детектора только приблизительно имеет форму круга, но является верным только тогда, когда площадь A много меньше, чем $4\pi D^2$. Сравнение уравнений (5.81) и (5.82) показывает, что когда D становится меньше R , величина для Ω из уравнения (5.82) становится слишком большой. Для $D/R = 8$, Ω составляет примерно 1 %; для $D/R = 1$, $\Omega \sim 70$ %.

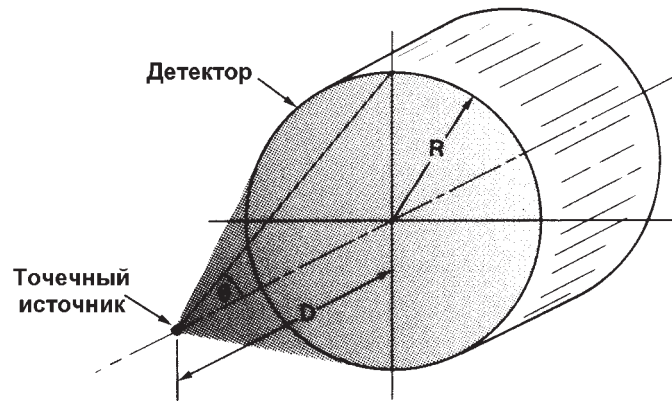


Рис. 5.20. Точечный источник на оси цилиндрического детектора

5.6.3 Относительная эффективность

Часто знание истинного значения абсолютной или собственной эффективности регистрации пика полного поглощения не является необходимым, и требуется только знать отношения эффективностей для различных значений энергии. Кривая относительной эффективности обычно определяется легче, чем абсолютная и собственная эффективности. Относительная эффективность отличается от абсолютной или собственной только постоянным множителем, который зависит от процедуры, используемой при определении относительной эффективности. Точные значения скоростей испускания гамма-квантов не требуются, а нужны только значения, которые пропорциональны скоростям испускания. Когда используется отдельный изотоп, испускающий много гамма-квантов различной энергии распада, необходимую информацию дают величины квантового выхода [15]. Уравнение (5.79) может быть модифицировано для получения выражения для определения относительной эффективности в случае одного источника:

$$\epsilon_R = A(\gamma) / B(\gamma), \quad (5.83)$$

где $B(\gamma)$ является коэффициентом ветвления распада, который соответствует площади пика $A(\gamma)$. Обычно кривые относительных эффективностей приведены

к 1,00 для некоторой удобной энергии. Полулогарифмический график относительной эффективности имеет ту же форму, что и соответствующие графики абсолютной и собственной эффективностей. На рис. 5.21 показан график кривой относительной эффективности коаксиального детектора, полученный с помощью спектра тонкого источника ^{133}Ba . Заметим, если предполагается, что коэффициенты ветвления распада пропорциональны скоростям испускания гамма-квантов из источника, то должны использоваться источники с пренебрежимо малым самопоглощением. Это предположение не верно для многих источников, помещенных в стальную капсулу, особенно при низких энергиях.

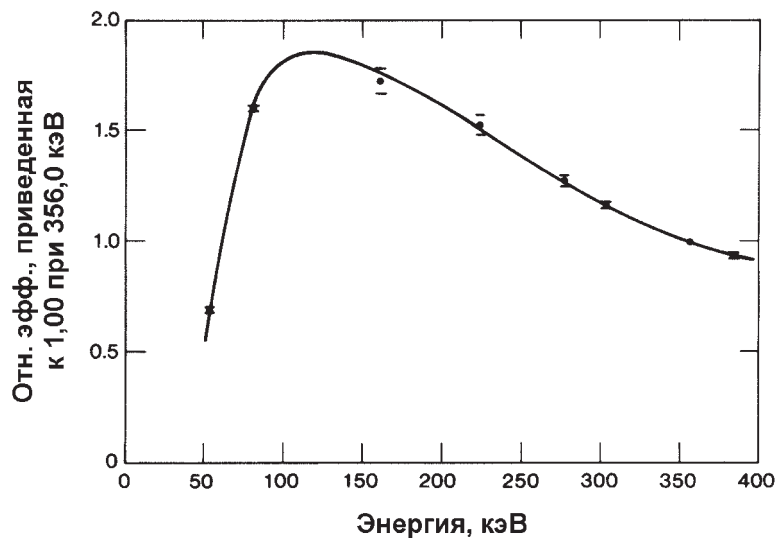


Рис. 5.21. Относительная эффективность коаксиального германиевого детектора между ~50 и ~400 кэВ, полученная с помощью спектра тонкого источника ^{133}Ba

5.6.4 Эффективность по отношению к детектору NaI(Tl) с чувствительным объемом $\varnothing 7,65 \times 7,65$ см

Производители германиевых детекторов обычно характеризуют эффективность коаксиальных детекторов, сравнивая ее с абсолютной эффективностью регистрации пика полного поглощения детектором NaI(Tl) с чувствительным объемом $\varnothing 7,65 \times 7,65$ см. Сравнение всегда проводится при энергии 1332,5 кэВ для расстояния источник-детектор, равного 25 см, а эффективность выражается в процентах по отношению к эффективности детектора NaI(Tl). Эффективность германиевого детектора измеряется, а абсолютная эффективность регистрации пика полного поглощения детектора NaI(Tl) предполагается равной 0,0012 для установленных значений энергии и расстояния. Выражение для расчета измеряемой эффективности германиевого детектора имеет вид:

$$\varepsilon_{\text{RNaI}} = \left[\frac{\text{FEIR}(1332,5) / \text{ER}(1332,5)}{0,0012} \right] 100, \quad (5.84)$$

где FEIR(1332,5) учитывает поправки на потери из-за мертвого времени и наложений, а ER(1332,5) — текущая скорость излучения. Расстояние источник-детектор очень трудно определить точно, так как кристалл германиевого детектора спрятан за торцевой крышкой криостата. Поскольку лицевая сторона кристалла детектора монтируется большинством производителей внутри детектора в пределах 5 мм от торцевой крышки, измерение производится на расстоянии 24,5 см от источника до торцевой крышки.

Если для определения просчетов скорости счета используется генератор импульсов на 60 Гц, можно записать уравнение (5.84) в следующем виде:

$$\varepsilon_{\text{RNaI}} = \frac{135,1 A(1332,5)}{A(p)I_0 \exp(-0,1318T)}, \quad (5.85)$$

где $A(1332,5)$ и $A(p)$ — площади пиков 1332,5 кэВ и генератора импульсов, а T — время, выраженное в годах, поскольку источник ^{60}Co имеет активность I_0 микрокюри. Если один источник используется постоянно, величина I_0 может быть включена в численную константу.

5.6.5 Эффективность в зависимости от энергии и положения

Обычно градуировка системы НРА осуществляется с использованием стандартных образцов, которые содержат известные количества исследуемых изотопов в упаковках подходящей формы и размера. Поскольку приблизительные эффективности детекторов используются только для оценки ожидаемых скоростей счета, необходимо обратить внимание на определение функциональной зависимости эффективности от энергии и положения. Детектор, который имеет такую характеристику, можно использовать для анализа без применения стандартных образцов, но с большей трудностью и с меньшей точностью. Когда стандартных образцов в распоряжении нет, или не позволяет пространство, могут быть проведены проверочные измерения отдельных образцов известной геометрии и содержания с использованием известной эффективности детектора для предсказания значений FEIR при выбранной геометрии детектор-образец. Если измеренные значения FEIR согласуются в пределах погрешностей с предсказанной скоростью счета, содержание образца считается определенным верно.

При построении приемлемых функций эффективности абсолютное значение эффективности измеряется для многих энергий и положений, а затем подгоняется к подходящей математической модели. Метод Клайна [16] сочетает разумную точность с простой процедурой определения параметров эффективности. Требуется несколько дней или более, чтобы точно определить характеристики детектора.

ЛИТЕРАТУРА

1. R. Gunnink, J. E. Evans, and A. L. Prindle, "A Reevaluation of the Gamma-Ray Energy and Absolute Branching Intensities of ^{237}U , $^{238,239,240,241}\text{Pu}$, and ^{241}Am ," Lawrence Livermore Laboratory report UCRL-52139 (1976).
2. M. E. Anderson and J. F. Lemming, "Selected Measurement Data for Plutonium and Uranium," Mound Laboratory report MLM-3009 (1982).

3. *Table of Isotopes*, 7th ed., C. M. Lederer and V. S. Shirely, Eds, (Jon Wiley & Sons, Inc., New York, 1978).
4. R. D. Evans, *The Atomic Nucleus* (McGraw-Hill Book Co., New York, 1955), Chapters 23-25.
5. P. R. Bevington, *Data Reduction and Error Analysis for the Physical Sciences* (McGraw-Hill Book Co., New York, 1969).
6. Y. Beers, *Introduction to the Theory of Error* (Addison-Wisley Publishing Co., Inc., Reading, Massachusetts, 1962).
7. T. Mukoyama, "Fitting of Gaussian to Peaks by Non-Iterative Methods," *Nuclear Instrument and Methods* 125, 289-291 (1975).
8. S. L. Meyer, *Data Analysis for Scientists and Engineers* (Jon Wiley & Sons, Inc., New York, 1975), p. 37.
9. R. B. Walton, E. I. Whitted, and R. A. Foster, "Gamma-Ray Assay of Low-Enriched Uranium Waste," *Nuclear Technology* 24, 81-92 (1974).
10. R. Gunnink, "Computer Techniques for Analysis of Gamma-Ray Spectra," Lawrence Livermore Laboratory report UCRL-80297 (1978).
11. R. G. Helmer and M. A. Lee, "Analytical Functions for Fitting Peak From Ge Semiconductor Detectors," *Nuclear Instrument and Methods* 178, 499-512 (1980).
12. G. K. Knoll, *Radiation Detection and Measurement* (Jon Wiley & Sons, Inc., New York, 1979).
13. J. G. Fleissner, C. P. Oertel, and A. G. Garrett, "A High Count Gamma-Ray Spectrometer System for Plutonium Isotopic Measurements," *Journal of the Institute of Nuclear Materials Management* 14, 45-56 (1986).
14. H. H. Bolotin, M. G. Strauss, and D. A. McClure, "Simple Technique for Precise Determination of Counting Losses in Nuclear Pulse Processing Systems," *Nuclear Instrument and Methods* 83 1-12 (1970).
15. R. A. Meyer, "Multigamma-Ray Calibration Sources," Lawrence Livermore Laboratory report M-100 (1978).
16. J. E. Cline, "A Technique of Gamma-Ray Detector Absolute Efficiency Calibration for Extended Sources," Proc. American Nuclear Society Topical Conference of Computers in Activation Analysis and Gamma-Ray Spectroscopy, Mayaguez, Puerto Rico (1978), pp. 185-196 (Conf. 780421).

Глава 6

Процедуры учета ослабления

Джек Л. Паркер
(Переводчик В. В. Свиридова)

6.1 ВВЕДЕНИЕ

Неразрушающий анализ (НРА) ядерного материала проводится на образцах больших размеров и с высоким самопоглощением. Типичные контейнеры для таких материалов представляют собой цилиндры емкостью от 2 до 220 л, даже небольшой образец с высокой концентрацией ядерного материала имеет значимое самоослабление. Хотя самоослабление гамма-излучения часто может не учитываться для бумажных фильтров или небольших ампул, которые используются в радиохимии, его, как правило, нельзя не учитывать при неразрушающем анализе ядерного материала.

Поскольку размеры и форма образцов ядерных материалов изменяются в широком диапазоне, то трудно создать подходящие эталоны для градуировки. В принципе градуировочные стандартные образцы не требуются, если точно известна эффективность детектора как функция положения источника, энергии, геометрии регистрации, если размеры и форма образцов точно известны и, кроме того, если точно известны интенсивности излучения гамма-квантов. Однако трудно с достаточной точностью определить эффективность детектора, так как все еще остаются значимые неопределенности в величинах удельной активности для многих важных источников гамма-квантов. Использование стандартных образцов сводит к минимуму или исключает необходимость точного знания эффективности детектора, геометрии регистрации и удельных активностей.

Наиболее авторитетное руководство по калибровке систем НРА ANSI N15.20-1975 [1] устанавливает, что стандартный образец представляет собой "объект, физически и химически аналогичный измеряемым объектам", других ограничений на анализ гамма-излучения не накладывается. Это руководство также указывает на то, что стандартные образцы должны выбираться таким образом, чтобы "содержание нуклидов в них охватывало ожидаемый диапазон масс измеряемых образцов". Такое ограничение может оказаться слишком мягким. Обычно для градуировки различных систем анализа гамма-излучения требуется относительно небольшое число эталонов, чтобы перекрыть широкий диапазон размеров, форм, химических составов и масс различных образцов.

В разделах 6.2–6.6 описывается природа и порядок расчета поправки на ослабление $CF(AT)$. Более подробно этот вопрос обсуждается в работе [2]. В разделе 6.7 рассматриваются стандартные образцы, а в разделе 6.8 описываются измерительные системы, использующие процедуры учета пропускания облучения через образец.

6.2 ПРОЦЕДУРЫ

6.2.1 Предварительные замечания

Процедуры и методы, описанные в данном разделе, более всего применимы для детекторов гамма-излучения высокого разрешения. Эти методы и поправки на ослабление могут использоваться также для измерений, проводимых с помощью детекторов низкого разрешения, но чтобы избежать чрезмерной погрешности, следует проявлять дополнительную осторожность, при этом точность результатов не будет такой же высокой, как в случае детекторов высокого разрешения.

Наиболее неприятным и важным обстоятельством при использовании гамма-спектрометрии является то, что скорость счета для конкретного гамма-излучения обычно не пропорциональна количеству нуклидов, испускающих гамма-излучение. Отсутствие такой пропорциональности объясняется двумя причинами: процессами, происходящими в электронике из-за скорости счета, которые приводят к мертвому времени и наложению импульсов, а также самоослаблением излучения в образце. Точные методы анализа гамма-излучения требуют введения точных поправок как на потери в электронике из-за скорости счета, так и на потери вследствие самоослабления излучения в образце. Поправки на потери в электронике подробно описываются в главе 5.

6.2.2 Общее описание процедуры анализа

Если исходную скорость счета умножить на соответствующие коэффициенты поправок на потери в электронике и потери вследствие самоослабления в образце, то можно записать (как в уравнении (5.55) раздела 5.4)

$$CR = RR \times CF(RL) \times CF(AT)$$

или

$$CR = FEIR \times CF(AT), \quad (6.1)$$

где CR — полная скорректированная скорость счета;

RR — исходная скорость счета;

$CF(RL)$ — коэффициент поправки на потери в электронике, связанные со скоростью счета;

$CF(AT)$ — коэффициент поправки на самоослабление в образце;

$FEIR$ — скорость счета в пике полного поглощения.

Если коэффициенты поправок правильно определены и рассчитаны, то CR есть скорость счета, которая наблюдалась бы, если бы не было потерь в электронике и если бы образец имел простую геометрическую форму (например, точка или линия) с пренебрежимо малым самоослаблением. Рассчитанная таким образом величина CR пропорциональна массе изотопа, испускающего исследуемое гамма-излучение. Тогда можно записать

$$CR = K \times M, \quad (6.2)$$

где M — масса анализируемого изотопа, а K — градуировочная постоянная, которая определяется с помощью соответствующих стандартных образцов и учитыва-

ет влияние эффективности детектора, телесных углов при измерении и скорости испускаемого гамма-излучения. $CF(AT)$ определяется в предположении, что значения CR для исследуемого и стандартного образцов совпадают, что справедливо, если исследуемый и стандартный образцы имеют одинаковую пространственную конфигурацию без самоослабления.

Вышесказанное представляет собой, по существу, общий метод пассивных измерений с использованием гамма-излучения. Отдельными шагами такого метода являются:

- 1) измерение исходной скорости счета;
- 2) определение поправки на потери в электронике (просчеты), связанные с скоростью счета;
- 3) определение поправки на самоослабление гамма-излучения в образце;
- 4) расчет полной скорректированной скорости, которая пропорциональна массе измеряемого изотопа;
- 5) определение постоянной пропорциональности, т.е. градуировочной постоянной путем использования соответствующих физических эталонов, при условии, что значения CR для стандартных и исследуемых образцов соответствуют идентичной неослабляющей геометрической форме, а так же идентичному положению относительно детектора.

Значения RR и $CF(RL)$ определить точно относительно легко, и эта процедура подробно рассматривается в главе 5.

6.2.3 Необходимые требования при определении коэффициента поправки на самоослабление

При определении значения $CF(AT)$ основной вопрос состоит в том, какая часть гамма-излучения, испускаемого в направлении детектора, действительно достигает детектора? Если материал образца может быть охарактеризован простым линейным коэффициентом ослабления μ_c , то в общем случае доля гамма-излучения, которая проходит через образец, может быть рассчитана. Для определения значения $CF(AT)$ ключевым моментом является определение величины μ_c .

Для проведения точного анализа гамма-излучения уместны следующие два требования:

- смесь элемента, испускающего исследуемое гамма-излучение, с элементами матрицы образца достаточно равномерна и однородна по составу и плотности;
- частицы, испускающие гамма-излучение, достаточно малы, поэтому самоослабление внутри отдельных частиц пренебрежимо мало.

Эти требования гарантируют, что линейный коэффициент ослабления имеет одно значение в достаточно большом диапазоне, поэтому его можно использовать для точного расчета доли гамма-излучения, испускаемого образцом. Все, что требуется — это то, чтобы коэффициент μ_c можно было рассчитать или измерить. Исследуемые образцы не обязательно должны иметь один и тот же или аналогичный химический состав, что и градуировочные стандартные образцы. Не предъявляется также требований к размерам и форме стандартных образцов, хотя имеются некоторые ограничения.

Предположение о “достаточной” однородности образца воспринимается с трудом и затруднительно для определения. То, что представляет собой приемлемую однородность, зависит от энергии гамма-излучения, химического состава образца и требуемой точности. Некоторые типы образцов всегда удовлетворяют этому требованию, другие же — почти никогда.

Массовые коэффициенты ослабления μ (глава 2) элементов накладывают фундаментальные ограничения на размеры, форму, состав и плотность образцов, которые можно успешно анализировать с помощью методов, использующих гамма-излучение. На рис. 6.1 показаны массовые коэффициенты ослабления для элементов от водорода ($Z = 1$) до плутония ($Z = 94$). Представленные на рисунке данные иллюстрируют почти все возможности и ограничения пассивных методов гамма-анализа. Следует заметить, что значение μ для урана при энергии 185,7 кэВ почти в шесть раз больше, чем для плутония при энергии 413,7 кэВ. Это означает, что при анализе ^{235}U с помощью излучения с энергией 185,7 кэВ имеются значительно более строгие ограничения по размерам образца, размерам частиц и однородности, чем при анализе ^{239}Pu с помощью его гамма-излучения с энергией 413,7 кэВ. Ниже энергии 80 кэВ для большинства элементов значение μ быстро увеличивается, при этом проблема учета ослабления становится трудноразрешимой для всех образцов, кроме очень малых.

На рис. 6.2. приведена оценка самоослабления для некоторых образцов¹ и показана доля потока гамма-излучения, выходящего нерассеянным из сферического источника в зависимости произведения $\mu\rho D$, где D является диаметром этой сферы. Например, для частицы UO_2 с плотностью $\rho = 10 \text{ г/см}^3$ и диаметром 200 мкм величина $\mu\rho D \approx 0,28$. При этом около 10 % испускаемого потока гамма-излучения с энергией 185,7 кэВ рассеивается с некоторой потерей энергии или полностью поглощается внутри частицы.

Растворы удовлетворяют критерию точного гамма-анализа, если в них отсутствуют частицы или осадки. Чистые порошки (PuO_2 , UO_2 , U_3O_8 и т.д.) почти всегда удобны для анализа, также как некоторые хорошо перемешанные отходы, например, такие как зола из печей для сжигания отходов. Топливные частицы с оболочкой (микротвэлы) и стержни для высокотемпературного газоохлаждаемого ядерного реактора (HTGR) близки к удовлетворению этих требований, но полученная с помощью такого анализа погрешность результатов возрастает до 5-10 %, если не введена поправка на самоослабление в ядрах частиц [5]. Небольшие количества (менее 10 г) гамма-излучателей с высоким атомным номером, смешанные с органическими веществами малой плотности и низким атомным номером, могут соответствовать поставленным требованиям, если отсутствуют частицы порошка со значительным самопоглощением. Большие количества (более 100 г) порошков веществ с большими атомными номерами будут почти наверняка иметь частицы, существенно ослабляющие излучение. Наихудший случай связан с металлической стружкой металлов высокой плотности с большими атомными номерами

1 Выражение для доли гамма-квантов, которые выходят нерассеянными и непоглощенными из сферы, свойства ослабления которой характеризуются величиной $X = \mu\rho D$, имеет следующий вид:

$$F = \frac{3}{2X} \left[1 - \frac{2}{X^2} + \exp(-X) \left(\frac{2}{X} + \frac{2}{X^2} \right) \right].$$

Обоснование этого выражения см. в работе [4].

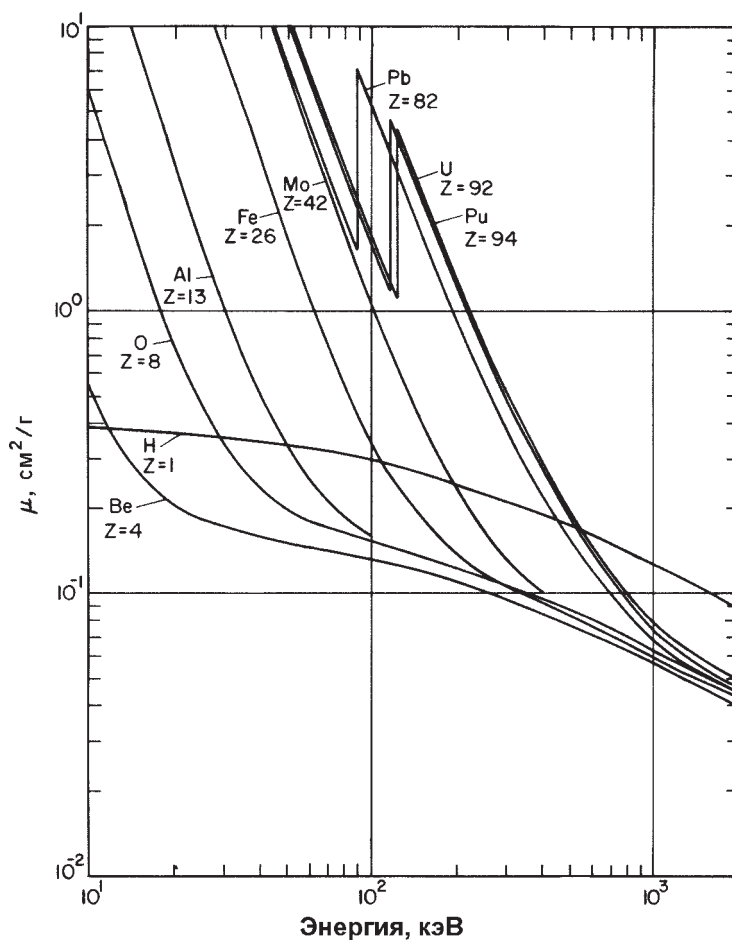


Рис. 6.1. Полные массовые коэффициенты ослабления (без учета когерентного рассеивания) в зависимости от энергии для девяти элементов с атомными номерами Z , изменяющимися в диапазоне от 1 до 94 [3]

Z или с таблетками топлива, смешанными с матрицами низкой плотности с малым атомным номером Z . В этой ситуации результаты анализа могут быть занижены в 2-3 раза и более. Это обстоятельство заставляет быть осторожным при использовании методов гамма-анализа экранированных гетерогенных материалов с целью исключения возможной ядерной опасности.

Необходимо подчеркнуть, что степень соответствия материалов этим двум требованиям является наиболее важным фактором в определении потенциальной точности гамма-анализа. Например, практика показывает, что небольшие образцы раствора (до нескольких десятых кубического сантиметра) могут измеряться с погрешностями до нескольких десятых долей процента. Образцы равномерных, однородных порошков объемом до нескольких литров измерялись с погрешностями, приближающимися к 1 %, несмотря на существенные отличия по плотности. Для больших контейнеров с отходами (например, бочек емкостью

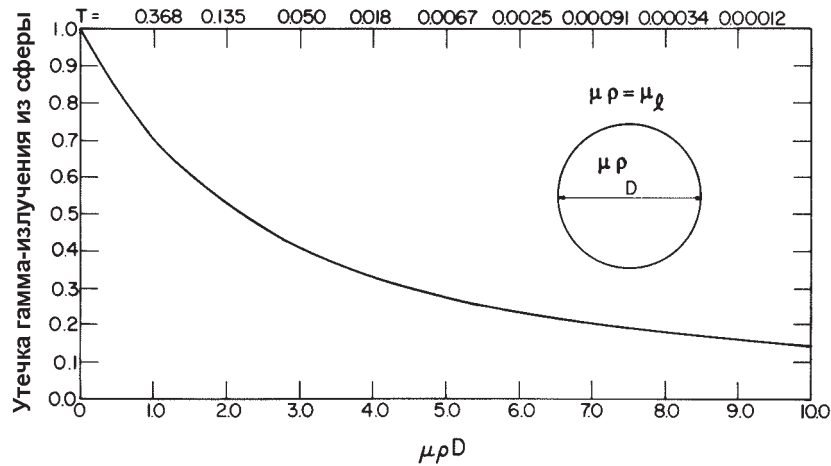


Рис. 6.2. Доля гамма-излучения, выходящая нерассеянной и непоглощенной из сферического источника в зависимости от $\mu\rho D$. Когерентное (упругое) рассеивание не учитывалось

113 литров) характерны погрешности $< 10\%$, при этом погрешность будет намного выше для случаев с высокой неоднородностью.

Другим важным обстоятельством, общим для гамма-анализа, является то, что результаты почти всегда хуже, когда образцы, несоответствующие предъявляемым к ним требованиям, анализируются вместе со стандартными образцами, которые удовлетворяют соответствующим требованиям. Процедуры, точно определяющие самоослабление в образцах, соответствующих предъявляемым требованиям, занижают значения поправок для образцов, которые не соответствуют этим требованиям.

6.2.4. Методы определения линейного коэффициента ослабления образца

Для определения коэффициента μ_c образца используются четыре основных метода [6]. Самый старый из них позволяет избежать проблем, используя представительные стандартные образцы. При этом набор градуировочных стандартных образцов подбирается по возможности наиболее близким к исследуемым образцам по размерам, форме и составу. Для получения градуировочной кривой производят измерения для стандартных образцов при постоянной геометрии, а анализ исследуемых образцов проводится путем измерения их при идентичной геометрии и сравнения числа отсчетов непосредственно с градуировочной кривой. Эта процедура дает хорошие результаты только тогда, когда исследуемые и стандартные образцы достаточно идентичны, поскольку одинаковая концентрация анализируемого материала в каждом образце дает один и тот же коэффициент μ_c и, соответственно, такой же коэффициент $CF(AT)$. Процедура с представительными стандартными образцами предполагает также, что просчеты из-за наложений и мертвого времени одинаковы для равных концентраций анализируе-

мых изотопов. Данный метод применим только тогда, когда природа и состав образца хорошо известны и по существу не изменяются.

Второй метод для расчета значения величины μ_c использует предварительно полученные сведения о химическом составе, массе и форме. Наличие достаточных сведений для расчета значения μ_c для образца не обязательно означает, что результат анализа известен заранее. Во многих случаях μ_c почти напрямую зависит от состава матрицы и массы, которая достаточно хорошо известна. Если требуются только проверочные измерения для хорошо известных материалов, то такой подход удобен, даже когда анализируемый материал вносит существенный вклад в самоослабление образца. Расчет μ_c образца на основе сведений о химическом составе и плотностях достаточно прост. В работах [3 и 7] приведены в табличной форме необходимые коэффициенты ослабления.

Третий метод определения коэффициента $SF(AT)$ включает измерение отношения интенсивностей излучения гамма-квантов двух различных энергий одного изотопа и сравнение этого отношения с аналогичным отношением для тонкого источника (с пренебрежимо малым самоослаблением), который содержит тот же изотоп. Этот метод имеет ограниченное применение, поскольку в общем случае μ_c неоднозначно связан с измеренными отношениями интенсивностей. Кроме того, для получения реальных коэффициентов поправок требуются некоторые предварительные сведения о природе образца. Более того, не все изотопы имеют два гамма-кванта с подходящими значениями энергий. Тем не менее, в определенных случаях этот метод удобнее и потенциально применим, когда требования по однородности и размерам частиц грубо нарушаются.

Четвертый и наиболее общий метод получения значения величины μ_c связан с измерением коэффициента пропускания пучка гамма-квантов от внешнего источника через образец. В соответствии с фундаментальным законом ослабления гамма-излучения, коэффициент пропускания описывается выражением

$$T = \exp(-\mu_1 x), \quad (6.3)$$

где x — толщина образца. Решая это выражение относительно μ_c , получаем

$$\mu_1 = \frac{-\ln(T)}{x}. \quad (6.4)$$

Этот метод не требует данных о химическом составе или плотности образца, а просто использует основные требования к однородности и размеру частиц. В действительности данный метод часто является более предпочтительным, даже если имеются некоторые сведения о составе образца, в частности, когда требуется наибольшая точность. Экспериментально полученные значения величины μ_c учитывают все влияния химического состава и плотности.

Метод пропускания может идентифицировать те образцы, для которых невозможно провести точные количественные измерения из-за чрезмерно большого самоослабления. Когда измеренный коэффициент пропускания излучения уменьшается, его точность ухудшается вместе с точностью измерения образца, тем самым увеличивая погрешность в расчетном значении коэффициента $SF(AT)$. Точность измерения пропускания становится неприемлемой для значений коэффициента пропускания в пределах между 0,01 и 0,001. Значения коэф-

коэффициента пропускания $\leq 0,001$ (возможны даже отрицательные величины) почти всегда указывают на невозможность проведения измерений для образцов.

6.3 ФОРМАЛЬНОЕ ОПРЕДЕЛЕНИЕ КОЭФФИЦИЕНТА ПОПРАВКИ НА САМООСЛАБЛЕНИЕ

6.3.1 Общее определение

Выражения для коэффициента $CF(AT)$ могут быть представлены рядом способов. По принятой здесь формулировке это коэффициент, который корректирует скорость счета и прямо пропорционален измеряемому количеству изотопа. Удобно определять коэффициент $CF(AT)$ по отношению к типовой геометрической форме, которая обычно проще, чем реальная форма:

$$CF(AT) = \frac{FEIR(\mu_1 = 0; \text{ типовая форма})}{FEIR(\mu_1 \neq 0; \text{ реальная форма})}, \quad (6.5)$$

где $FEIR(\mu_c = 0; \text{ типовая форма})$ — $FEIR$, которая была бы получена в результате измерений, если бы образец полностью не имел ослабления ($\mu_c = 0$) и если бы образец был приведен к типовой форме;

$FEIR(\mu_c \neq 0; \text{ реальная форма})$ — реальная измеренная $FEIR$ для образца.

На практике значение коэффициента $CF(AT)$ не рассчитывается по уравнению (6.5); оно определяется из μ_c , геометрической конфигурации и положения образца относительно детектора. Как правило, выражения для коэффициента $CF(AT)$ нельзя представить в виде элементарных функций, поэтому для расчетов должны использоваться численные методы.

В общем случае не требуется знать эффективность детектора. Обычно детектор можно считать точечным с одинаковой эффективностью регистрации излучения по всем направлениям, что существенно упрощает расчеты. Это предположение, как правило, выполняется, когда расстояние между образцом и детектором, по крайней мере, в несколько раз больше максимального размера либо детектора, либо образца. Если расстояние между образцом и детектором должно оставаться небольшим (из-за требований к эффективности регистрации) и если требуется наибольшая достижимая точность результатов, то может использоваться реальная измеренная или рассчитанная эффективность детектора в зависимости от энергии и его положения. Клайн [8] описывает процедуру определения функции эффективности на основе измерений для стандартных источников.

6.3.2 Удобные типовые формы образцов

Наиболее удобными типовыми формами образцов являются:

- реальная;
- точечная;
- линейная.

Если имеется много анализируемых и стандартных образцов одной и той же геометрической формы и размера, то коэффициент $CF(AT)$ может рассчитываться относительно образца той же формы, который не имеет ослабления. Когда образец достаточно однороден, имеет обычную форму и приемлемые размеры, то следует дать возможность детектору обследовать весь образец и использовать значение коэффициента $CF(AT)$, рассчитанное по отношению к точке, которая не имеет ослабления. Это позволяет использовать стандартные образцы, которые имеют размеры, формы и химический состав, отличные от соответствующих характеристик исследуемых образцов. Однако, для того чтобы такой анализ был точным, весь образец целиком должен быть представлен одним значением μ_c с приемлемой точностью.

Образцы часто имеют различия в составе и различную плотность по вертикали, что является естественным следствием заполнения относительно узких контейнеров сверху вниз. Материал имеет тенденцию укладываться в контейнере слоями. В таких случаях ослабление излучения не удастся правильно охарактеризовать одной величиной μ_c . Точность анализа может быть улучшена с помощью сегментного сканирования, при котором детектор просматривает образец через коллиматор, обеспечивающий относительно узкие горизонтальные сегменты, в пределах которых μ_c можно считать постоянной величиной. При таком сегментном сканировании лучше всего вычислять коэффициент $CF(AT)$ по отношению к линии, проходящей вдоль оси контейнера на некотором расстоянии и не имеющей ослабления. При таком способе можно точно проанализировать цилиндрические образцы относительно стандартных, которые имеют совершенно другие значения диаметра.

6.4 ОСНОВНЫЕ ПАРАМЕТРЫ КОЭФФИЦИЕНТА ПОПРАВКИ НА САМООСЛАБЛЕНИЕ

Коэффициент поправки на самоослабление $CF(AT)$ является функцией многих параметров. Общеизвестно, что наиболее важными параметрами являются (параметры перечислены в порядке убывания их важности):

- μ_c материала образца;
- объем и форма материала образца;
- μ_c контейнера образца;
- размеры и форма контейнера образца;
- положение и ориентация образца относительно детектора;
- размеры, форма и эффективность детектора.

Во многих случаях зависимость величины $CF(AT)$ от нескольких параметров слабо выражена. Например, когда расстояние от образца до детектора по крайней мере в несколько раз превышает максимальные размеры детектора, то зависимостью $CF(AT)$ от размеров, формы и эффективности детектора часто можно пренебречь. Когда расстояние между образцом цилиндрической формы и детектором по крайней мере в несколько раз превышает максимальный размер либо образца, либо детектора, то коэффициент $CF(AT)$ обычно в сильной степени зависит от μ_c образ-

ца, слабо зависит от его размеров и от расстояния до детектора и имеет пренебрежимо малую зависимость от размеров, формы и эффективности детектора.

Наиболее сильное упрощение имеет место при больших расстояниях от образца до детектора, когда максимальные размеры образца и детектора пренебрежимо малы по сравнению с разделяющим их расстоянием (так называемая "дальняя геометрия"). В этом случае гамма-кванты достигают детектор по существу в виде параллельного пучка. При небольших изменениях расстояния между образцом и детектором или при малом размере образца отсутствует зависимость от размеров или формы детектора, за исключением влияния размера на ту долю гамма-излучения, которая покидает образец. Для нескольких геометрических форм образцов могут быть получены простые аналитические выражения. Часто они представляют собой удобные приближения для случаев анализа образцов, при которых, строго говоря, не выполняются условия дальней геометрии. Действительно, случай дальней геометрии является полезным эталонным значением для анализа случаев ближней геометрии.

Обычно зависимость $CF(AT)$, полезно представить в графическом виде от параметра μ_c , (наиболее сильная зависимость) и построить отдельные кривые для определенных значений других параметров. Поскольку μ_c часто определяют с помощью измерения коэффициента пропускания гамма-излучения T и используют зависимость $T = \exp(-\mu_c x)$, то более удобно представить графическую зависимость $CF(AT)$ от $\ln(T)$.

Рассмотрим выражение для коэффициента $CF(AT)$ для случая анализа в дальней геометрии для прямоугольных образцов, просматриваемых в направлении, перпендикулярном к боковой стороне:

$$CF(AT) = \frac{\mu_1 x}{[1 - \exp(-\mu_1 x)]}, \quad (6.6)$$

где x — толщина образца в направлении, перпендикулярном к детектору.

Используя выражение $T = \exp(-\mu_c x)$, можно записать простое выражение

$$CF(AT) = \frac{-\ln(T)}{(1 - T)}. \quad (6.7)$$

Если $T \ll 1$, то коэффициент $CF(AT) \cong -\ln(T)$, поэтому график зависимости коэффициента $CF(AT)$ от $\ln(AT)$ является почти прямой линией. На рис. 6.3 показан график зависимости, соответствующий уравнению (6.7). На этом графике также показана зависимость коэффициента $CF(AT)$ от $\ln(T)$ для образцов цилиндрической и сферической форм, где T измеряется по диаметру образца. Все случаи имеют зависимость $CF(AT) \cong k \ln(T)$ для $T \ll 1$. Эта приближенная зависимость относительно $\ln(T)$ существует для большинства геометрий анализа образцов и ее очень полезно иметь в виду.

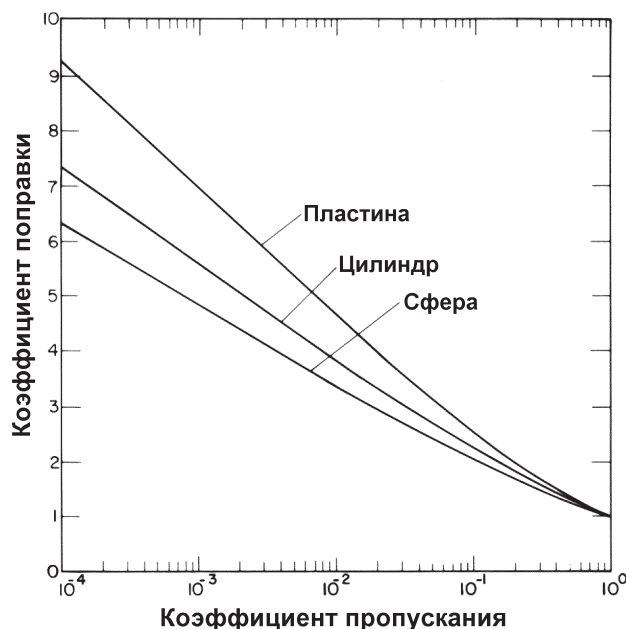


Рис. 6.3. Коэффициенты поправки для дальней геометрии для образцов в форме пластины, цилиндра и сферы как функции коэффициента пропускания, который измеряется по нормали к лицевой поверхности пластины и по диаметру для цилиндрического и сферического образцов

6.5 АНАЛИТИЧЕСКИЕ ЗАВИСИМОСТИ ДЛЯ КОЭФФИЦИЕНТА ПОПРАВКИ НА САМООСЛАБЛЕНИЕ В ДАЛЬНЕЙ ГЕОМЕТРИИ

В общем случае интегральные выражения для коэффициента $CF(AT)$ в случаях ближней геометрии нельзя выразить с помощью элементарных функций. Однако для случаев дальней геометрии были получены выражения для трех простых форм образцов: пластины (прямоугольного параллелепипеда), цилиндра и сферы. На рис. 6.3 приведены зависимости коэффициента поправки $CF(AT)$ для всех трех форм образцов, а в табл. 6.1 представлены численные значения для этих трех случаев.

Таблица 6.1 – Коэффициенты поправки для пластины, цилиндра и сферы в зависимости от коэффициентов пропускания для дальней геометрии

Коэффициент пропускания	Пластина*	Цилиндр**	Сфера**
1,0000	1,000	1,000	1,000
0,8000	1,116	1,097	1,086
0,6000	1,277	1,231	1,202
0,4000	1,527	1,434	1,376
0,2000	2,012	1,816	1,701
0,1000	2,558	2,238	2,054
0,0500	3,153	2,692	2,431
0,0200	3,992	3,326	2,956
0,0100	4,652	3,826	3,370
0,0010	6,915	5,552	4,805
0,0001	9,211	7,325	6,288

* Пропускание перпендикулярно поверхности

** Пропускание по диаметру

6.5.1 Образцы в форме пластины

Только для образца в форме пластины существует достаточно простое выражение. Из уравнения (6.5) можно записать выражение для коэффициента CF(AT) по отношению к образцу, который не имеет ослабления (типовая форма такая же, как реальная форма), в виде

$$CF(AT) = \frac{\int_V \rho I \epsilon \, dV}{\int_V \rho I \epsilon \exp(-\mu_1 r) \, dV}, \quad (6.8)$$

где ρ – объемная плотность образца, г/см³;

I – интенсивность гамма-излучения образца, γ/г·с;

ϵ – абсолютная эффективность регистрации пика полного поглощения;

μ_1 – линейный коэффициент ослабления образца;

r – расстояние, которое гамма излучение проходит внутри образца;

dV – элемент объема.

Параметры ρ , I и μ_1 являются постоянными, а параметры ϵ и r – функциями положения. Экспоненциальный член в знаменателе для большинства геометрических конфигураций не может быть выражен через элементарные функции.

Рассмотрим конфигурацию, показанную на рис. 6.4. Параметр I постоянен для заданного изотопа, а ρ и μ_c также являются постоянными, благодаря предположению об однородности образца. Предположение о большом расстоянии от образца до детектора эквивалентно предположению о том, что ϵ также является постоянной величиной.

Благодаря этому предположению имеет смысл только интегрирование по X . После очевидных упрощений получаем

$$CF(AT) = \frac{\int_0^X dx}{\int_0^X \exp[-\mu_1(X-x)] dx} \quad (6.9)$$

После вычисления интегралов получаем

$$CF(AT) = \frac{\mu_1 X}{1 - \exp(-\mu_1 X)}, \quad (6.10)$$

как в уравнении (6.6)

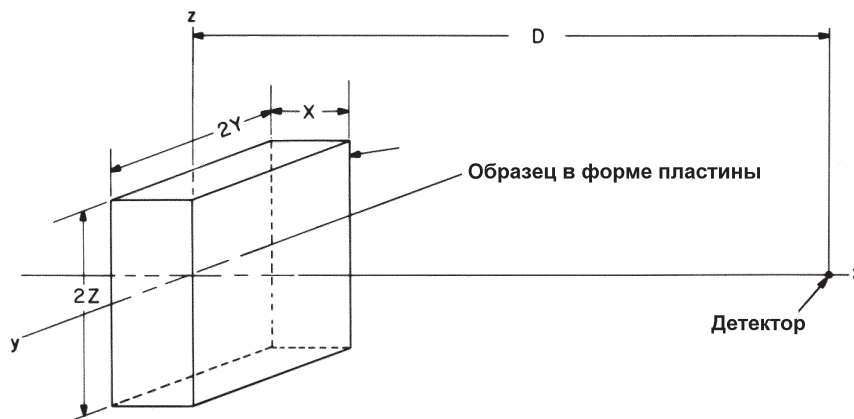


Рис. 6.4. Геометрия расчета для образца в форме пластины (с координатами и размерами), которая используется для получения значения коэффициента поправки для дальней геометрии

6.5.2 Цилиндрические образцы

Для цилиндрического образца, просматриваемого по диаметру, в случае дальней геометрии [9]

$$CF(AT) = \frac{1}{2} \frac{\mu_1 D}{I_1(\mu_1 D) - L_1(\mu_1 D)}, \quad (6.11)$$

где L_1 — модифицированная функция Струве первого порядка;
 I_1 — модифицированная функция Бесселя первого порядка;
 D — диаметр образца;
 μ_c — линейный коэффициент ослабления образца.

Это выражение очень компактно, но не удобно для использования из-за наличия в нем функций Струве и Бесселя [10]. Уравнение (6.11) использовалось для получения кривой для цилиндра, представленного на рис. 6.3. Следует отметить, что коэффициент $CF(AT)$ для цилиндра немного меньше, чем коэффициент для образца в форме пластины (прямоугольного параллелепипеда). В образце цилиндрической формы меньше гамма-квантов должно проникать через максимальную толщину материала; по этой причине доля гамма-квантов, покидающих образец, больше, а коэффициент $CF(AT)$ в этом случае меньше.

6.5.3 Образцы сферической формы

Для образца сферической формы в случае дальней геометрии коэффициент поправки равен [4]:

$$CF(AT) = \left(\frac{3/2}{\mu_1 D} \left\{ 1 - \frac{2}{(\mu_1 D)^2} + \exp(-\mu_1 D) \left[\frac{2}{\mu_1 D} + \frac{2}{(\mu_1 D)^2} \right] \right\} \right)^{-1}. \quad (6.12)$$

Это выражение графически показано на рис. 6.3. Коэффициент $CF(AT)$ для сферы меньше, чем для параллелепипеда или цилиндра. В среднем гамма-излучение проходит меньшее расстояние, чтобы выйти из сферы, чем для цилиндра или куба. Образцы сферической формы редко встречаются на практике, однако подстановка коэффициента $CF(AT)$ дает долю гамма-излучения, выходящего из сферических частиц, и удобна для принятия решения о том, удовлетворяет ли образец требованиям к размерам сферических частиц. Показанные на рис. 6.2 данные были получены на основе уравнения (6.12).

6.6 ЧИСЛЕННЫЕ РАСЧЕТЫ ДЛЯ БЛИЖНЕЙ ГЕОМЕТРИИ

6.6.1 Общие положения

Для большинства случаев малых расстояний от образца до детектора (ближней геометрии), для которых должна точно учитываться обратная квадратичная зависимость, результирующие выражения не могут быть выражены через элементарные функции. Как следствие этого, должны использоваться численные методы, которые предполагают использование компьютеров. Однако даже при использовании вычислительных возможностей современных компьютеров необходимо применять простейшую модель. Часто невозможно упростить расчеты, принимая предположение о точечном или линейном детекторе с эффективностью, независимой от угла падения потока излучения. Для сложных геометрий могут использоваться вычислительные программы, использующие метод Монте-Карло. Однако для задач НРА легко могут применяться упрощенные модели и простые одно-, двух- и трехмерные методы численного интегрирования с использованием простых программ и небольших компьютеров. Точность НРА с использованием гамма-излучения обычно в большей степени определяется подобием формы и однородностью образца, а не точностью расчета коэффициента $CF(AT)$.

Существуют приближенные аналитические формулы, которые дают соответствующие точные значения коэффициента $CF(AT)$ в необходимом диапазоне ко-

эфициента пропускания излучения. Несколько таких формул приведено ниже. Пригодность формул может быть определена путем сравнения с результатами более точных численных расчетов. Приближенные аналитические формулы часто обеспечивают возможность получения аналитических выражений для расчета точных значений коэффициента $CF(AT)$.

6.6.2 Одномерная модель

Общепринятой геометрией анализа образца является такая геометрия, при которой германиевый детектор просматривает бутылку с раствором снизу. Геометрические формы как детектора, так и образца, хорошо аппроксимируются цилиндрами. Предположим, что оси симметрии бутылки и детектора совпадают, и что радиус детектора составляет r_d , радиус образца — r_s , высота образца — D и расстояние от образца до детектора — d (рис. 6.5). Если d в несколько раз больше радиусов r_d и r_s , то все гамма-кванты приходят в детектор под углами более $\sim 10^\circ$ относительно их общей оси. Поскольку $\cos\Theta \geq 0,95$ для углов $< 19^\circ$, ясно, что гамма-кванты пройдут расстояние на пути к детектору всего на несколько процентов большее, чем расстояние в направлении, параллельном их общей оси. Следовательно, этот случай может быть описан одномерной моделью, содержащей точечный детектор и находящийся от него на расстоянии d линейный образец “глубиной” D с линейным коэффициентом ослабления μ_e , как показано на рис. 6.6. Эта модель учитывает влияние закона обратной квадратичной зависимости от расстояния и ослабления гамма-излучения, которые являются главными эффектами, оказывающими влияние на величину коэффициента $CF(AT)$.

Используя эту модель, получаем величину коэффициента $CF(AT)$ для образца, который не имеет ослабления:

$$CF(AT) = \left[\int_0^D \frac{dx}{(d+x)^2} \right] / \left[\int_0^D \frac{[\exp(-\mu_1 x)] dx}{(d+x)^2} \right], \quad (6.13)$$

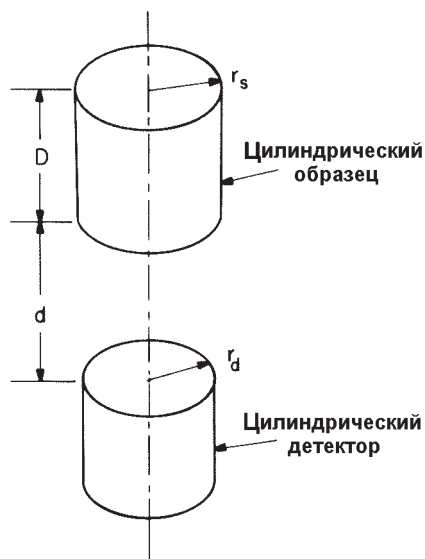


Рис. 6.5. Общепринятая вертикальная геометрия анализа, для которой пригодна одномерная модель для расчета коэффициента $CF(AT)$

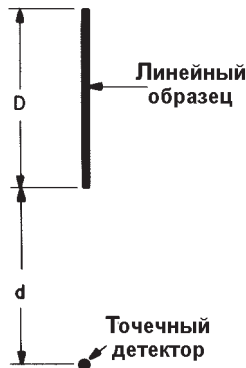


Рис. 6.6. Одномерная модель для расчета коэффициента $CF(AT)$

где исключены все постоянные, имеющие отношение к эффективности детектора и интенсивности гамма-излучения. В числителе интеграл равен $D/[d(d + D)]$. Интеграл в знаменателе не может быть выражен с помощью элементарных функций, но он может быть представлен виде суммы. Тогда выражение для $CF(AT)$ имеет следующий вид:

$$CF(AT) = \left[\frac{D}{d(d+D)} \right] / \sum_{i=1}^N \frac{\{\exp(-\mu_1 x(I-0,5)\Delta x)\} \Delta x}{[d+(I-0,5)\Delta x]^2}, \quad (6.14)$$

где $\Delta x = D/N$, а N равно числу интервалов численного интегрирования. Обычно принимают $N \cong 100$, что дает погрешность результатов менее 0,1 %. Численное интегрирование можно было бы, разумеется, выполнить с большей точностью и с меньшим количеством шагов, используя правило Симпсона или другие более точные методы. Уравнение (6.14) ясно показывает функциональную зависимость коэффициента $CF(AT)$ от d , D и μ_1 , а также эквивалентность интеграла сумме. Параметр D определяется как высота образца. Параметр d , однако, хуже определен, так как гамма-кванты взаимодействуют с материалом при прохождении через детектор, а средняя глубина взаимодействия является функцией энергии. Опыт показывает, что если номинальная величина d по крайней мере в несколько раз превышает величину D , то с помощью набора стандартных образцов, перекрывающих широкий диапазон значений μ_1 , величина d в уравнении (6.14) может быть подобрана таким образом, чтобы давать такую величину коэффициента $CF(AT)$, чтобы скорректированная скорость счета на единицу активности становилась почти постоянной в широком диапазоне значений величины μ_1 . Подбор d компенсирует неточно известное расстояние между образцом и детектором и отличие одномерной модели от реальной трехмерной геометрии образца.

На рис. 6.7 показаны результаты измерения с использованием только что описанной процедуры. Образцы представляли собой растворы нитрата обедненного урана в бутылочках объемом 25 мл с плоским дном площадью 10 см² (круглые цилиндры диаметром 3,57 см и высотой 2,5 см). Концентрация урана изменялась в диапазоне от 5 до 500 г/л, и все образцы были помечены равным количеством ⁷⁵Se, который являлся материалом источника, уран служил только в качестве поглотителя. Кристалл детектора имел диаметр и длину равные 4,0 см. Для гамма-излучения с энергией 136,0 кэВ от источника ⁷⁵Se коэффициенты поправки на приборные потери $CF(RL)$ изменялись в пределах ~ 10 %, в то время как коэф-

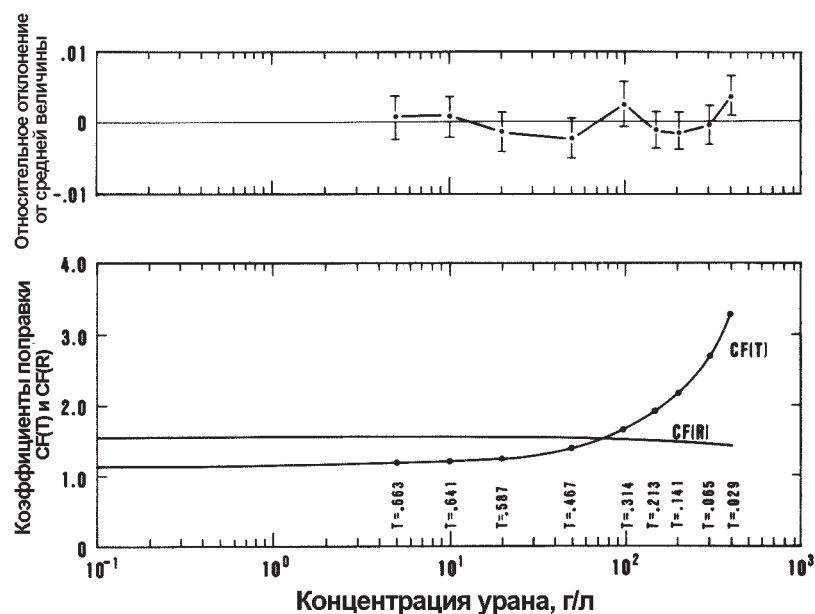


Рис. 6.7. Результаты измерений, предназначенные для проверки применимости одномерной модели для расчета коэффициента $CF(AT) = CF(T)$

коэффициенты поправки на ослабление гамма-излучения $CF(AT)$ изменялись до $\sim 275\%$.

Поскольку каждый образец имел одинаковое количество ^{75}Se , то скорректированная интенсивность излучения с энергией 136,0 кэВ должна быть равной для всех образцов. В верхней части рисунка приводится отклонение скорректированных интенсивностей от средней величины и указывается типичная статистическая погрешность измерений. Все скорректированные интенсивности находятся в пределах диапазона $\pm 0,5\%$ от средней величины. В этом случае расстояние от дна образца до средней длины пробега квантов в детекторе составляло около 8 см, а уточненное значение составило 9,0 см. С качественной стороны одномерная модель дает значения коэффициента $CF(AT)$, которые немного хуже по сравнению с трехмерной моделью поправок, так как гамма-кванты проходят через несколько больших толщин раствора, чем в случае одномерной модели. Увеличение значения параметра d в общем случае приводит как к росту коэффициента $CF(AT)$, так и к росту коэффициента $CF(AT)$ для меньших величин T . Поэтому используемое в расчетах значение d обычно немного больше физического.

Если набор образцов растворов имеет различные, но определяемые высоты, то было бы предпочтительнее рассчитывать величину коэффициента $CF(AT)$ относительно точечного образца без ослабления, чтобы скорректированные интенсивности могли сравниваться непосредственно для всех образцов. Отношение коэффициента $CF(AT)$, определенного для точки без ослабления, к коэффициенту $CF(AT)$, определенного для образца без ослабления, составляет $(1+D/d)$ независимо от величины μ_c . Все значения коэффициента $CF(AT)$, как для стандартных, так и для измеряемых образцов, должны рассчитываться по отношению к од-

ной и той же не имеющей ослабления геометрической форме, чтобы можно было непосредственно сравнивать скорректированные интенсивности.

6.6.3 Двухмерная модель

В другой общепринятой геометрии анализа детектор просматривает цилиндрический образец с боковой стороны (рис. 6.8). Если высота (длина) образца меньше его диаметра и расстояние от детектора до центра образца по крайней мере в несколько раз больше диаметра образца, то для расчета величины коэффициента $CF(AT)$ может использоваться простая двухмерная модель. Модель представляет собой точечный детектор, находящийся на расстоянии D от центра круглого образца радиуса R (рис. 6.9). Эффективность детектора постоянна для гамма-квантов, выходящих из любой точки в пределах объема образца. Коэффициент поправки относительно образца без ослабления, может быть записан в виде

$$CF(AT) \cong \frac{(\pi / 2) \ln[1 - R^2 / D^2]}{\sum_{m=1}^M \sum_{n=1}^N \{ \exp[-\mu_1 t(m, n)] \Delta A(n) / L^2(n, m) \}}. \quad (6.15)$$

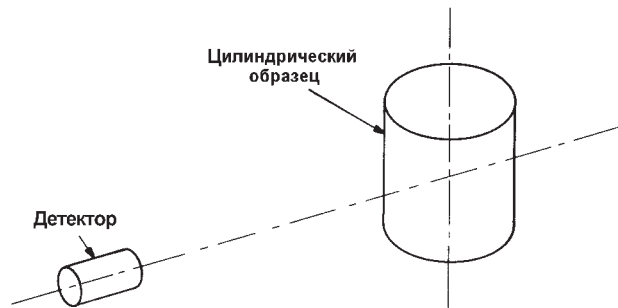


Рис. 6.8. Типичная геометрия анализа, для которой обычно приемлема двухмерная модель расчета значения коэффициента $CF(AT)$

Вывод этого выражения приведен в работе [2]. Отношение коэффициента $CF(AT)$, рассчитанного для образца без ослабления, к коэффициенту $CF(AT)$, рассчитанному для точки, в которой нет ослабления, равно $-(D^2/R^2) \ln(1-R^2/D^2)$. Для постоянной величины T коэффициент $CF(AT)$ является только функцией отношения D/R . На рис. 6.10 приведен график коэффициента $CF(AT)$ в зависимости от D/R для нескольких значений T . Существенным моментом является то, что коэффициент $CF(AT)$ медленно снижается при уменьшении отношения D/R ; большие изменения проявляются при небольших значениях величины T . Такое поведение является следствием закона обратной квадратичной зависимости. Для заданной величины T коэффициент $CF(AT)$ асимптотически приближается к максимуму, когда отношение D/R стремится к бесконечности. Отклонения от случая больших расстояний ($D/R = \infty$) представлены на рис. 6.11. Для $T > 0,001$ и $D/R > 50$ все отклонения не превышают 1%. Поэтому $D/R \geq 50$ может считаться

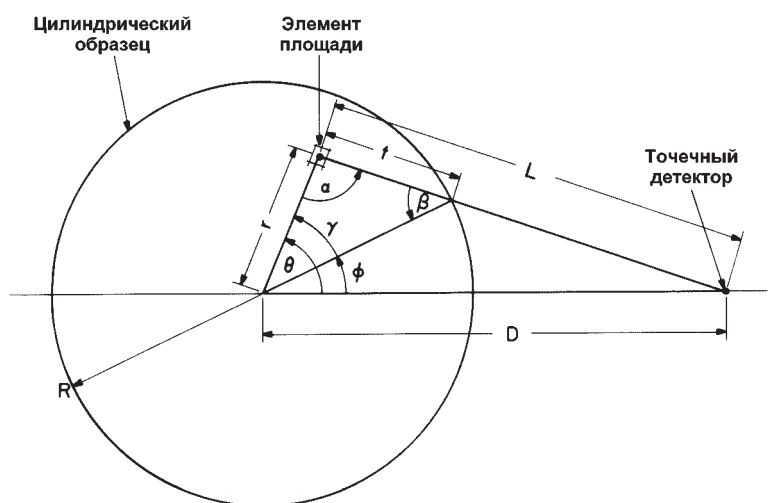


Рис. 6.9. Двухмерная модель для расчета коэффициента $CF(AT)$. На рисунке показаны расстояния, которые должны быть определены, и переменные, через которые они выражаются. Следует заметить, что $0 \leq \alpha \leq \pi$, $\beta \leq \pi/2$ и $0 \leq \gamma \leq \pi$

случае дальней геометрии. Изменение коэффициента $CF(AT)$ в зависимости от T намного сильнее, чем от отношения D/R .

Результаты, представленные на рис. 6.10 и рис. 6.11, были получены с помощью компьютера при значениях $M=200$ и $N=200$, для которых все значения в пределах 0,1 % согласуются с величинами, которые дали бы действительные интегралы. Общее число рассчитанных элементов площади составило 40000, а требуемое время на определение каждой величины — около 2 мин. Время, необходимое для точного определения поправочного коэффициента, во многом зависит от вычислительной аппаратуры и используемого языка программирования. При двухмерном численном интегрировании результаты с высокой точностью могут быть получены за время около 1 мин. Для трехмерной модели, если третья размерность также задается с помощью 200 интервалов, требуемое время для выполнения интегрирования увеличивается до сотен минут.

6.6.4 Трехмерная модель

В качестве заключительной модели геометрии анализа рассмотрим пример сегментированного анализа цилиндрических образцов. В этом случае (рис. 6.12) детектор просматривает образец через горизонтальный коллиматор, который выделяет сегменты образца, которые просматриваются индивидуально. Образец обычно располагается настолько близко к коллиматору, насколько это возможно. Детектор часто представляет собой круглый цилиндр из германия диаметром 5,0 см и длиной 5,0 см. В этом случае необходимо точно учитывать эффекты обратной квадратичной зависимости, обусловленные коллиматором. Двухмерная модель в этом случае неприменима.

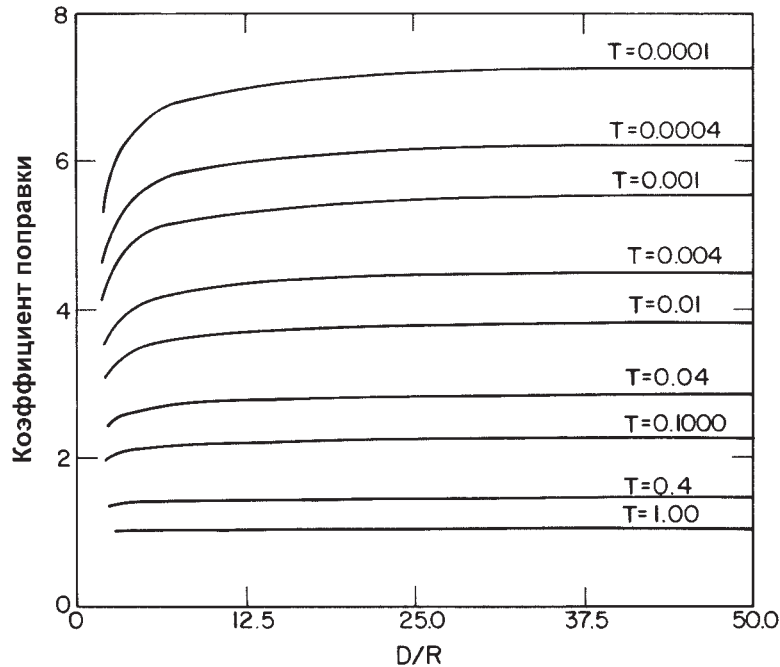


Рис. 6.10. Рассчитанные по двумерной модели коэффициенты поправки относительно образца, не имеющего ослабления. Они изображены графически в зависимости от отношения D/R для различных значений коэффициента пропускания T .
 D — расстояние от центра цилиндрического образца до точечного детектора,
 R — радиус образца

Модель состоит из идеального коллиматора (исключающего утечки) и вертикального линейного детектора, центр которого расположен с задней стороны коллиматора. Предполагается, что эффективность детектора не зависит от местоположения источника или угла, под которым гамма-кванты попадают в детектор. Расстояние от излучающего элемента до детектора увеличивается на постоянную величину, приблизительно равную средней глубине взаимодействия в детекторе. Поскольку материалы часто упаковываются в металлические контейнеры, которые существенно ослабляют испускаемое гамма-излучение, то упаковка также включена в модель. Получение трехмерной модели выходит за рамки настоящей книги; этот вопрос подробно рассматривается в работе [2].

6.6.5 Приближенные формулы и интерполяция

Наиболее точным способом расчета коэффициента $CF(AT)$ для приемлемых геометрий образцов является использование простой математической модели и численного интегрирования. Однако, ввиду длительных временных затрат на выполнение расчетов, часто требуется выполнить расчеты коэффициента $CF(AT)$ всего для нескольких значений величины T (или μ_c) и использовать процедуру интерполяции для нахождения значения коэффициента $CF(AT)$ при промежуточных значениях. К проблеме интерполяции можно подойти несколькими способами.

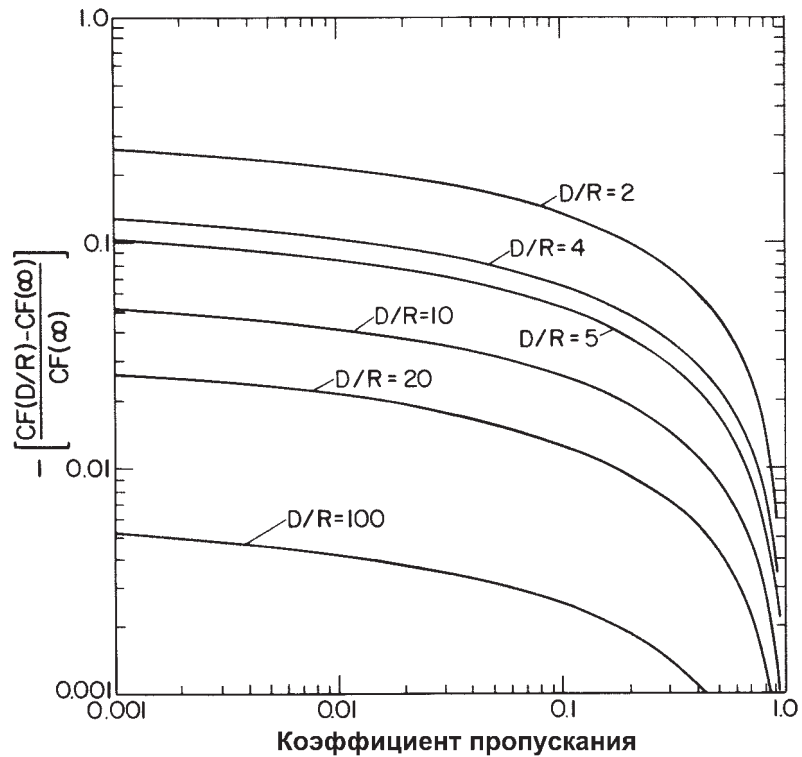


Рис. 6.11. Зависимость отклонения значений коэффициента $CF(AT)$ для ближней геометрии от значений коэффициента для дальней геометрии в зависимости от коэффициента пропускания при различных значениях отношения D/R

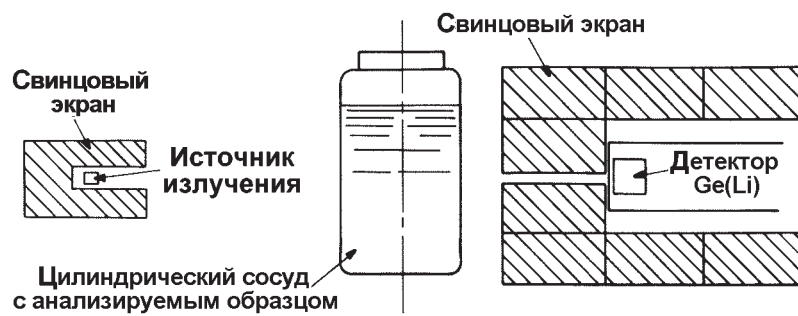


Рис. 6.12. Типичный случай сегментного анализа образца, для которого пригодна трехмерная модель расчета коэффициента $CF(AT)$

Так как коэффициент $CF(AT)$ имеет приближенную логарифмическую зависимость $\log(T)$ (см. рис. 6.3), то целесообразно использовать функцию подгонки в виде

$$CF(AT) = A + B \log(T) + C[\log(T)]^2. \quad (6.16)$$

Для расчетов требуется, чтобы для каждой геометрии образца в памяти компьютера хранились постоянные A , B и C . Эта схема работает очень хорошо в широком диапазоне значений T . При типичном случае сегментного сканирования могут определяться постоянные A , B и C , чтобы дать значения коэффициента $CF(AT)$ с погрешностью не более 0,3 % в диапазоне $0,008 < T < 0,30$.

Наиболее простая схема основана на формуле для коэффициента $CF(AT)$ в дальней геометрии для образца в форме пластины: $-\ln(T)/(1-T)$. Учитывая, что круг не сильно отличается от квадрата (см. рис. 6.3), можно перейти к выражению

$$CF(AT) \cong \frac{-\ln(T^k)}{(1-T^k)}, \quad (6.17)$$

для $k < 1$ в качестве приближенной функции для цилиндрических образцов даже в случае ближней геометрии. Эта формула также имеет логарифмическую зависимость $\ln(T)$ для $T \ll 1$ и содержит только одну постоянную, которая должна быть определена. На рис. 6.13 и рис. 6.14 показано, насколько точной может быть приближенная формула. На рис. 6.13 приведено относительное отклонение уравнения (6.17) от точных значений для дальней геометрии для цилиндра (уравнение (6.11)) в зависимости от T и k . На рис. 6.14 сравниваются приближенные и точные значения при анализе образца цилиндрической формы в случае малого расстояния от образца до детектора, когда $D/R=5/1$. На рис. 6.13 для $k=0,82$ даны значения коэффициента $CF(AT)$ с погрешностью до $\pm 0,01$ % для $0,01 < T < 1,0$, а на рис. 6.14 для $k=0,75$ даны значения коэффициента $CF(AT)$ с погрешностью до $\pm 1,5$ % для $0,01 < T < 1,0$.

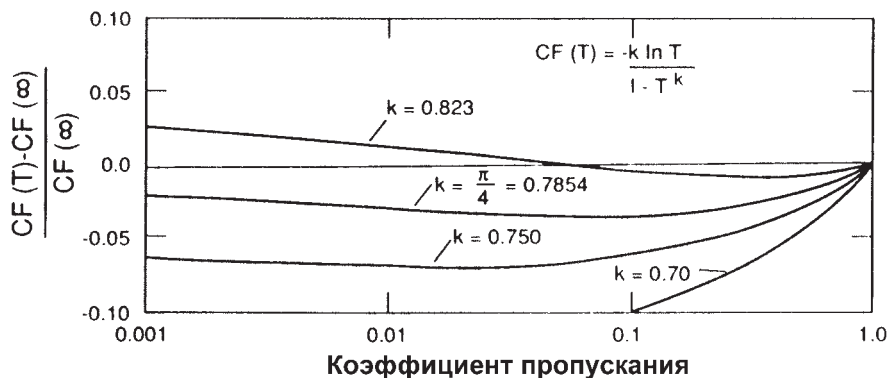


Рис. 6.13. Отклонения значений коэффициента $CF(AT)$, рассчитанных по приближенному выражению $CF(AT) = -k \ln T / (1 - T^k)$, от значений этого коэффициента при дальней геометрии для цилиндра при нескольких значениях параметра k

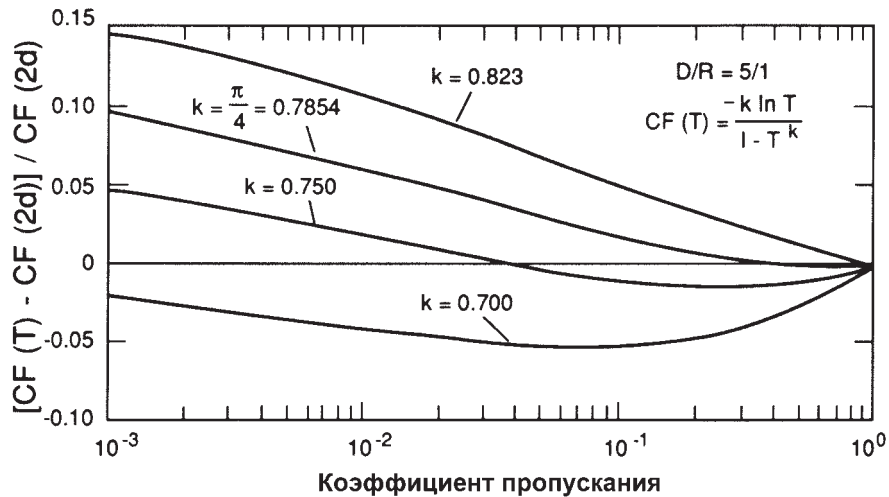


Рис. 6.14. Отклонения значений коэффициента $CF(AT)$, рассчитанных по приближенному выражению $CF(AT) = -k \ln T / (1 - T^k)$, от значений, полученных с помощью двухмерной модели для цилиндрических образцов с $D/R = 5$. Отклонения представлены графически как функция коэффициента пропускания T для нескольких значений параметра k

Выбор процедуры интерполяции или приближенной формулы для расчета коэффициента $CF(AT)$ зависит от точности, необходимой или возможной для анализируемых материалов. Для рабочих условий измерений неоднородных бочек, содержащих ^{235}U , точность в большей степени определяется неоднородностью материала в образцах, чем функцией, которая используется для расчета значения коэффициента $CF(AT)$. Когда уровень погрешности $\pm 25\%$ представляет собой все, на что можно рассчитывать, то бесполезно создавать модель и производить численное интегрирование для определения значения коэффициента $CF(AT)$. С другой стороны, если образцы представляют собой растворы, когда тщательное моделирование и расчеты могут дать погрешности менее 1% , такая попытка полностью оправдана.

6.6.6 Влияние абсолютной и относительной погрешностей при расчете коэффициента поправки на самоослабление

Предполагается, что системы анализа с использованием гамма-излучения градуируются с помощью соответствующих стандартных образцов. Предполагается также, что коэффициент $CF(AT)$ определяется как для неизвестных образцов, так и для стандартных образцов. Как правило, коэффициент $CF(AT)$ главным образом является функцией измеряемого коэффициента пропускания T с некоторым влиянием геометрических параметров.

Следует проанализировать последствия использования ошибочной функции для определения величины коэффициента $CF(AT)$. На рис. 6.15 показаны правильная и ошибочная функции для расчета величины коэффициента $CF(AT)$. Примем следующие обозначения:

$CF(T) = CF(AT)$ — является функцией от T ;

G — масса анализируемого изотопа в неизвестном образце.

Надстрочные индексы f и t обозначают величины, связанные с правильной и ошибочной функциями для расчета коэффициента $CF(AT)$, а подстрочные индексы u и s обозначают величины, связанные с исследуемым и стандартным образцами. Отношение ошибочной величины к правильной составляет

$$\frac{G^f}{G^t} = \frac{CF^f(T_u) / CF^t(T_u)}{CF^f(T_s) / CF^t(T_s)}. \quad (6.18)$$

Это отношение непосредственно не зависит от абсолютной погрешности определения значения коэффициента $CF(T)$, а только от отношения относительных величин. Если это отношение равно $\sim 1,00$, то результаты анализа будут правильными, несмотря на любую абсолютную погрешность при определении коэффициента $CF(AT)$.

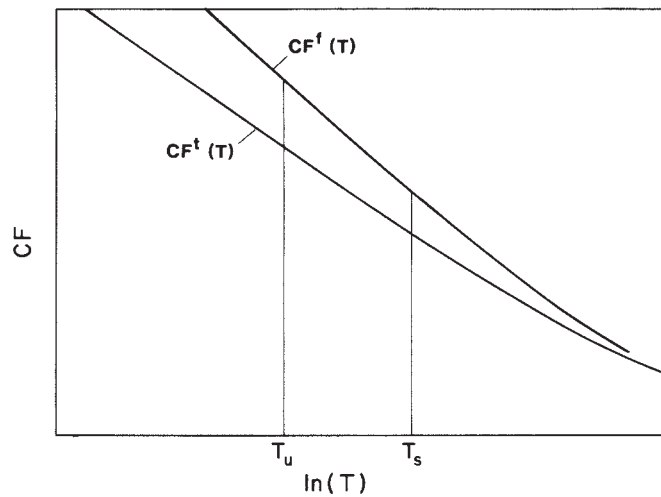


Рис. 6.15. Кривая иллюстрирует последствия использования ошибочной функции для расчета коэффициента $CF(AT)$. Кривая $CF^f(T)$ представляет ошибочную функцию для определения величины коэффициента $CF(AT)$, а кривая $CF^t(T)$ — правильную функцию. T_u и T_s представляют коэффициенты пропускания для исследуемого и стандартного образцов, соответственно

Этот результат показывает, что легче правильно отградуировать систему с помощью образцов для узкого диапазона коэффициентов пропускания (что обычно означает узкий диапазон концентраций изотопа образца), чем для широкого диапазона. Следует также подчеркнуть, что, если требуется высокая точность в широком диапазоне концентраций, необходимо соблюдать особую осторожность при моделировании геометрии анализа и расчете коэффициента $CF(AT)$.

Рассматривая трудность расчета коэффициента $CF(AT)$, можно задаться вопросом, почему бы не использовать стандартные образцы для определения градуировочной постоянной как функции от T ? Действительно, это можно сделать, но предпочтительно только в качестве точной настройки системы градуировки. Из-

меняемая градуировочная постоянная или кривая нелинейной градуировки только затрудняют понимание тех моментов, которые непонятны в физике выполнения анализа.

6.6.7 Точность определения коэффициента поправки на самоослабление и полной скорректированной скорости счета

При правильно работающей системе НРА, которая использует гамма-излучение, точность почти всецело является функцией случайной природы излучения и регистрации гамма-квантов. Влияние флуктуаций параметров электроники и дрейфов в приборах не превышает 0,1 %. Основная статистическая составляющая погрешности анализа может быть оценена по значениям площадей пиков полного поглощения и их погрешностей. Общая погрешность, включая любой вклад аппаратуры, оценивается на основе воспроизводимых анализов. Электронная и механическая стабильность системы анализа могут оцениваться путем сравнения общей погрешности с погрешностью, оцениваемой на основе площадей пиков и их погрешностей.

Рассмотрим влияние погрешности определения значения коэффициента $CF(AT)$ на конечную погрешность анализа. Ослабление пропорционально коэффициенту CR , который задается (см. уравнение (6.1)) выражением $CR=FEIR \times CF(AT)$. Процедуры, используемые для получения выражений для $\sigma(CR)$, $\sigma(FEIR)$ и $\sigma[CF(AT)]$, подробно рассматриваются во многих литературных источниках (двумя относительно простыми являются работы [11 и 12]). Здесь мы стремимся подчеркнуть несколько моментов, относящихся к получению приемлемого выражения для $\sigma(CR)$.

Если величина CR может быть записана в виде аналитической функции площадей пиков, то может быть получено выражение для $\sigma(CR)$. Однако, когда коэффициент $CF(AT)$ определен с помощью численных процедур, величина $\sigma(CR)$ не может быть рассчитана непосредственно. Для получения выражения для $\sigma(CR)$ можно использовать приближенную функцию для $CF(AT)$. Приближенные формулы для определения величины коэффициента $CF(AT)$ часто недостаточно точны для расчета CR , но они обычно дают приемлемое выражение для $\sigma(CR)$. В разделе 6.6.2 использовалась одномерная модель для определения коэффициента $CF(AT)$ в случае цилиндрических образцов. При определении выражения для $\sigma(CR)$ можно было использовать уравнение (6.7) или модифицированное уравнение (6.17) для коэффициента $CF(AT)$. Соответствующее значение величины k можно выбрать путем сравнения с погрешностями, рассчитанными на основе повторных анализов. Эта процедура дает точность, которая обеспечивается численным интегрированием более точной модели для определения величины коэффициента $CF(AT)$ и дает хорошие оценки для $\sigma(CR)$.

Хотя $\sigma(CR)$ определяет погрешность анализа, иногда представляет интерес величина $\sigma[CF(AT)]$. Выражение для $\sigma[CF(AT)]$ будет всегда проще, чем выражение для $\sigma(CR)$. Если нет площадей пиков, которые являются общими для определения выражений $FEIR$ и $CF(AT)$, то

$$\sigma_r(CR) = \sqrt{\sigma_r^2(FEIR) + \sigma_r^2[CF(AT)]}, \quad (6.19)$$

где $\sigma_r(x) \equiv \sigma(x)/x$.

Если имеются площади пиков, общие для выражений FEIR и CF(AT), то уравнение (6.19) не справедливо, и выражение для CR должно быть записано как явная функция таких площадей пиков. Формулы для определения погрешности часто сложны, но обычно может быть достигнуто существенное упрощение с помощью разумных приближений. Подобные упрощения сокращают время расчетов и обеспечивают лучшее понимание основного источника неточности.

6.7 ФАКТОРЫ, ОПРЕДЕЛЯЮЩИЕ ТРЕБУЕМОЕ КОЛИЧЕСТВО СТАНДАРТНЫХ ОБРАЗЦОВ

Существующее в настоящее время требование, чтобы диапазон масс стандартных образцов НРА охватывал ожидаемый диапазон исследуемых образцов, может быть существенно смягчено. Такое утверждение становится очевидным из последующих разделов.

Настоятельное требование, чтобы стандартные образцы охватывали диапазон ожидаемых масс, по-видимому, основывается на том, что к результатам измерений будет подгоняться нелинейная функция градуировки. Для систем НРА с использованием гамма-излучения этими данными могут быть RR или FEIR. Графики этих функций достаточно нелинейны, а экстраполяция нелинейной функции за пределы измеренных данных опасна. Однако, если коэффициенты поправки CF(RL) и CF(AT) определены правильно, то получается общая скорректированная скорость счета, которая является линейной функцией массы образца. Если градуировочная функция (уравнение (6.2)) является линейной, то экстраполяция гораздо менее опасна, чем в случае нелинейных градуировочных функций, и логическое рассуждение основывается на требовании, чтобы диапазон масс стандартных образцов перекрывал диапазон анализируемых образцов.

Для уравнения (6.2) градуировочную постоянную K можно определить с помощью одного стандартного образца. Однако разумно использовать несколько стандартных образцов, расширяя принятый диапазон масс и, возможно, изменяя другие параметры, такие как плотность образца и состав матрицы или размер образца. Использование нескольких стандартных образцов помогает подтвердить, что коэффициенты CF(RL) и CF(AT) правильно определяются и что уравнение (6.2) справедливо. Если выявлена некоторая нелинейность, то первым делом следует скорректировать задачу (задачи) в отношении аппаратуры или расчета коэффициентов CF(RL) и CF(AT), а не добавлять дополнительные члены в уравнение градуировки. Изменение уравнения градуировки просто скрывает влияние плохо отрегулированной аппаратуры. После того, как работа аппаратуры и алгоритмы вычислений стали настолько хорошими, насколько это возможно, и если еще существует некоторая нелинейность, то можно рассмотреть возможность изменения уравнения градуировки. Поскольку такие проблемы часто являются результатом работы в широком диапазоне скоростей счета, то сначала рассматривают две или более линейные градуировки с двумя параметрами для более ограниченных диапазонов масс. Такое уточнение функции градуировки требуется не часто. Чаще точность ограничена неоднородностью или чрезмерно большим размером частиц, и почти всегда достаточно одной линейной градуировки с одним параметром.

Границы, в которых можно безопасно экстраполировать линейную градуировку вне области имеющихся данных, зависят от того, производится ли экстраполяция в сторону меньших или больших масс. При низкой концентрации изотопа в образце обычно преобладает самоослабление в матрице и коэффициент $CF(AT)$ изменяется очень медленно в широком диапазоне концентраций. Аналогично, при низких скоростях счета коэффициент $CF(RL)$ не только изменяется медленно, но он мал и точно определяется. Вследствие этого можно быть уверенным в допустимости экстраполяции в направлении к наименьшим порогам обнаружения. Например, рассмотрим анализ раствора ^{235}U с помощью гамма-излучения с энергией 185,7 кэВ. Для разумных объемов образца (более 25 мл) концентрация $^{235}U \sim 10$ г/л может обеспечить погрешность результатов $\sim 0,5\%$ за время измерения 1000 с. Образец с концентрацией ^{235}U , равной 0,1 г/л, имеет почти такой же коэффициент $CF(AT)$ и дает погрешность $\sim 5\%$ при анализе в течение 1000 с, что, вероятно, может считаться приемлемым. Однако потребовалось бы 100000 с для анализа стандартного образца ^{235}U с концентрацией 0,1 г/л с погрешностью до 0,5 %, которая могла бы потребоваться для получения градуировочной характеристики. При анализе стандартных образцов с очень низкими уровнями концентрации может быть потеряно много времени.

Экстраполяция для масс, превышающих массы стандартных образцов, должна производиться более осторожно, особенно если стандартный образец с наибольшей массой находится на уровне, когда оба коэффициента $CF(AT)$ и $CF(RL)$ быстро изменяются, или когда суммарные скорости счета достигают пределов работы электроники с точки зрения обеспечения соответствующего разрешения и формы пика. Работоспособность системы при больших массах и скоростях счета должна подтверждаться с помощью какого-нибудь материала источника, даже если не существует стандартного образца для требуемого уровня массы. Например, если было подтверждено, что система способна точно измерять пропускание на уровне 1 % при скорости счета 50000 с^{-1} , то нет уверенности в анализе неизвестного образца с пропусканием 1 % при этой скорости счета 50000 с^{-1} , даже если стандартный образец для наибольшей массы имеет пропускание $\sim 2\%$ и дает общую скорость счета около 40000 с^{-1} . Если весь диапазон масс дает приемлемые скорости счета, а также малые и медленно изменяющиеся величины коэффициентов $CF(RL)$ и $CF(AT)$, то надежнее выполнять экстраполяцию в сторону увеличения масс.

Благодаря последнему замечанию обладание соответствующим набором стандартных образцов не компенсирует отсутствие знания о том, как их использовать или как поступать в случае неправильно настроенной или неправильно работающей аппаратуры, несоответствующей геометрии образцов, неправильных выражений для коэффициентов поправки или образцов, которые не соответствуют требованиям по равномерности и однородности. Все эти обстоятельства являются важными факторами для выполнения точных анализов с использованием гамма-излучения и ни одним из них нельзя пренебрегать. При надлежащем учете всех факторов, включая правильное и эффективное использование градуировочных стандартных образцов, система НРА с использованием гамма-излучения может обеспечить экономичные, не требующие много времени и точные анализы для многих материалов.

6.8 МЕТОДЫ, ИСПОЛЬЗУЮЩИЕ ОТНОШЕНИЯ ИНТЕНСИВНОСТЕЙ ГАММА-ИЗЛУЧЕНИЙ

Методы, использующие отношения интенсивностей гамма-излучений, имеют несколько ограниченное применение для определения коэффициента $CF(AT)$. Подробное рассмотрение многих методов отношений выходит за рамки настоящей книги, однако краткое их обсуждение может дать читателю представление об их возможностях и ограничениях. Основная идея этих методов заключается в определении значения μ_c и коэффициента $CF(AT)$ на основе отношения интенсивностей гамма-излучений различных энергий. Рассмотрим образец в форме пластины с толщиной x , содержащий изотоп, который излучает гамма-излучение со значениями энергий E_1 и E_2 ; предположим, что исходные интенсивности излучений равны. Используя уравнение (6.6), отношение площадей пиков (A) равно

$$\frac{A_2}{A_1} = \frac{CF(E_1)}{CF(E_2)} = \frac{\mu_1(E_1)}{\mu_1(E_2)} \text{ для } \mu_1 x \gg 1. \quad (6.20)$$

Если состав матрицы или эффективный атомный номер Z известен или предполагается, то может оказаться возможным использование измеренного отношения коэффициентов ослабления для определения отдельных коэффициентов и оценки значения $CF(E)$. Основой всех методов отношений является идея о том, что гамма-излучения с различными энергиями ослабляются по разному и могут нести информацию о свойствах ослабления материалов, через которые они проходят.

Методы отношений интенсивностей гамма-излучений требуют предположений об однородности и размерах частиц, рассмотренных в разделе 6.2.3. Если эти предположения не выполняются, то методы введения поправок на пропускание излучения дают обычно плохие результаты. Методы отношений интенсивностей дают результаты, которые обычно лучше, чем результаты методов поправок на пропускание, но могут вызывать перекомпенсацию, определяемую размерами излучающих частиц.

Методы отношений интенсивностей гамма-излучений требуют некоторых дополнительных знаний об образце. Требуемая информация изменяется в зависимости от процедуры, но часто включает в себя плотность образца и эффективный атомный номер Z . Эффективный атомный номер обычно подразумевает, что кривая массового ослабления образца соответствует кривой для некоторого одного элемента. Для многоэлементных смесей, особенно содержащих водород, кривая далеко не соответствует кривой для одного элемента.

Во многих случаях методы отношений могут давать предупреждение, что предположения о равномерности и размере частиц нарушаются. К сожалению, хотя методы отношений могут давать предупреждение о потенциально неточных случаях измерений, в настоящее время не существует известного способа, при котором методы отношений могут существенным образом учесть возникшие проблемы. Сочетание методов поправок на пропускание и отношений интенсивностей дает наиболее полную информацию о данном образце.

Часто предполагается, что применение методов отношений проще, так как они не требуют использования источника излучения для измерения пропускания. В действительности, представляется сомнительным, что эти методы проще, поскольку:

- а) методы отношений требуют либо измерения, либо расчета требуемой величины “при отсутствии ослабления”;
- б) методы отношений требуют некоторых знаний о составе матрицы;
- в) во многих случаях метод отношений требует знания чистого веса и объема образца;
- г) методы отношений часто требуют нескольких итераций для достижения наилучшего результата.

Как методы поправки на пропускание, так и методы отношений интенсивностей для получения наилучших результатов обычно требуют знания размеров образцов и их положений относительно детектора.

6.9 ПРИМЕРЫ АНАЛИЗА

Эта глава включает в себя некоторые вопросы, полезные для проведения анализа с использованием гамма-излучения, и несколько примеров реальных измерений. В изданной Комиссией США по ядерному регулированию книге “Справочник по методам измерений для обеспечения ядерных гарантий” [13] приведены основные отличительные особенности и рабочие характеристики многих систем анализа с использованием гамма-излучения.

6.9.1 Удобные сочетания гамма-излучений для анализа, пропускания и опорных пиков

Образец материала, подлежащий анализу, иногда может использоваться как источник излучения, чтобы определить пропускание для требуемой энергии. Часто невозможно получить такой источник с достаточной интенсивностью (уран и плутоний прекрасно поглощают свое собственное гамма-излучение). Ряд соображений определяют выбор источника излучения при анализе заданного изотопа: гамма-излучение для определения коэффициента пропускания должно быть близко по энергии к анализируемому гамма-излучению; энергия излучения для определения пропускания должна быть ниже энергии анализируемого излучения образца, чтобы комптоновский фон источника излучения для пропускания не попадал в область анализируемого пика; гамма-излучение не должно интерферировать с каким-либо гамма-излучением, используемым для анализа. Аналогичные соображения относятся к выбору образцового источника для определения поправки на мертвое время (наложения) импульсов. В течение ряда лет были обнаружены и использовались многие полезные комбинации источников излучений. В табл. 6.2 приведены некоторые комбинации, которые оказались особенно полезными.

6.9.2 Интерполяция и экстраполяция коэффициента пропускания излучения

Интерполяция энергии образца между двумя пиками пропускания предпочтительнее экстраполяции за пределами одного или более пиков пропускания. Данные, приведенные в табл. 6.2, показывают, что анализ ^{235}U с помощью его гамма-излучения с энергией 185,72 кэВ при измеренных значениях коэффициента пропускания излучения ^{169}Yb для энергий 177,2 и 198,0 кэВ дает такую благоприятную ситуацию. Предполагая наличие линейного соотношения между пропус-

канием и энергией, коэффициент пропускания для любой промежуточной энергии E определяется выражением

$$T(E) = \left(\frac{E_2 - E}{E_2 - E_1} \right) T_1 + \left(\frac{E - E_1}{E_2 - E_1} \right) T_2. \quad (6.21)$$

Если $E=185,7$, $E_1=177,2$ и $E_2=198,0$, то $T(E)=0,591(T_1)+0,409(T_2)$.

Таблица 6.2 – Полезные комбинации источников

Анализируемый изотоп	Источник для определения пропускания	Источник для определения поправок
^{238}Pu 766,4 кэВ	^{137}Cs 661,6 кэВ	^{133}Ba 356,3 кэВ
^{239}Pu 413,7 кэВ	^{75}Se 400,1 кэВ	^{133}Ba 356,3 кэВ
^{235}U 185,7 кэВ	^{169}Yb 177,2, 198,0 кэВ	^{57}Co 122,0 кэВ
^{238}U 1000,1 кэВ	^{54}Mn 834,8 кэВ	^{137}Cs 661,6 кэВ
^{237}Np 311,9 кэВ	^{203}Hg 279,2 кэВ	^{235}U 185,7 кэВ

Когда гамма-кванты, используемые для определения коэффициента пропускания, близки по энергии (в этом примере разность равна 21 кэВ), то обычно допустима линейная интерполяция, но если пики пропускания гамма-излучения разнесены гораздо дальше один от другого, то это может оказаться недопустимым. Если три или более гамма-квантов, разнесенных по энергии, испускаются от источника для определения пропускания гамма-излучения, то может оказаться возможным подогнать измеренные точки, чтобы определить точные значения коэффициента пропускания для промежуточных энергий. Если ослабление гамма-излучения для заданного образца является доминирующим для элемента с высоким атомным номером Z (U , Pu , Th и т.д.), то массовый коэффициент ослабления образца очень хорошо описывается степенной зависимостью от энергии

$$\mu(E) = KE^{-\gamma}, \quad (6.22)$$

где K и γ являются постоянными величинами. Если это справедливо, то зависимость $\ln(-\ln T)$ от $\ln E$ является линейной, и допустима интерполяция в широком диапазоне энергий.

Когда может измеряться только коэффициент пропускания, то поправка на энергию квантов образца часто возможна на основе соответствующего знания химического состава образца. Применяемое уравнение имеет вид

$$T_\alpha = T_t^\alpha, \quad (6.23)$$

где $\alpha = \mu_\alpha / \mu_t$,

μ_α, μ_t — массовые коэффициенты ослабления для анализируемой энергии и энергии для определения коэффициента пропускания.

В качестве примера рассмотрим анализ золы, загрязненной ^{239}Pu (414 кэВ), используя излучение ^{137}Cs (662 кэВ). Ее можно рассматривать как смесь двух компонентов, один из которых имеет ослабляющие свойства кислорода, а другой — свойства плутония. В табл. 6.3 показано изменение $\alpha(\mu_\alpha/\mu_\text{т})$ в зависимости от весовой доли плутония (F_{Pu}). Так как золы содержат как правило менее 10 % Pu по весу, то значение $\alpha=1,27$ можно брать как среднюю величину для измерений.

Таблица 6.3 – Изменение отношения $\mu(414 \text{ кэВ})/\mu(662 \text{ кэВ})$ в зависимости от весовой доли плутония

F_{Pu}	$\alpha = \mu(414 \text{ кэВ})/\mu(662 \text{ кэВ})$	
0	1,21	
0,1	1,33	
0,3	1,54	
0,5	1,71	
0,7	1,84	
0,9	1,95	
Массовый коэффициент ослабления, $\text{см}^2/\text{г}$		
	414 кэВ	662 кэВ
μ_{Pu}	0,26	0,13
μ_{O}	0,093	0,077

6.9.3 Анализ урана-235 в дальней геометрии

В табл. 6.4 приведены результаты анализов ^{235}U и 13 стандартных образцов четырех различных типов для случая неколлимированного потока излучения в дальней геометрии. Германиевый детектор устанавливался на расстоянии 80 см от центра образца. Реперный источник ^{241}Am использовался для определения поправок на мертвое время и наложение импульсов. Для стандартных образцов типов 1, 2 и 3 коэффициенты поправки на самоослабление образцов (CF_{186}) рассчитывались с использованием значений m , полученных из измеренных значений коэффициента пропускания гамма-излучения (T_{186}). Алгоритмы расчетов были аналогичны рассмотренным в разделе 6.6.2. Для стандартных образцов типа 4, которые представляют собой металлический уран с точно известной массой и размером, коэффициенты поправки рассчитывались по формуле для дальней геометрии (уравнение (6.6)). В табл. 6.4 показаны скорректированные интенсивности взаимодействия на грамм ^{235}U (отклик), которые должны быть одинаковыми для всех 13 стандартных образцов. Отклик нормирован на среднюю величину по двум откликам для трех типов. Средняя величина для 13 результатов составляет 0,999, стандартное отклонение ~0,5 %, а максимальное отклонение от средней величины составляет ~ 1,1 %. Эти данные прекрасно согласуются между собой, учитывая широкий диапазон размеров образцов, их форму, химический состав и содержание урана, особенно если учесть, что коэффициенты поправки находились в диапазоне от 1,26 до 3,30.

Таблица 6.4 – Перекрестное сравнение градуировочных стандартных образцов

Стандартный образец	Тип 1				Тип 2			Тип 3			Тип 4		
Контейнер	Бутылка из полипропилена							Пузырек емкостью 5,4 мл			Тонкий пластмассовый мешок		
Размер/Форма	8,26 см (внутренний диаметр) x 17 см (высота)							14,7 мм (внутренний диаметр) x 5 см (высота)			Диск 5,08 см (диаметр) x от 0,25 мм до 0,50 мм (толщина)		
Состав	U ₃ O ₈ и графит				Раствор урана и HNO ₃			Раствор U и HNO ₃ или HCl			Металлический U		
²³⁵ U, %	92,83				10,08			93,12			93,15		
Уран, г	200,0	100,0	50,0	10,00	155,8	103,7	52,0	4,246	2,546	0,848	21,49	9,579	9,058
²³⁵ U, г	185,7	92,8	46,4	9,28	15,70	10,45	5,24	3,956	2,371	0,790	20,02	8,92	8,44
T ₁₈₆	0,022	0,091	0,184	0,335	0,033	0,064	0,123	0,249	0,377	0,588	0,210	0,499	0,518
CF ₁₈₆	3,30	2,32	1,88	1,54	2,994	2,552	2,132	1,729	1,493	1,263	1,976	1,388	1,365
Отклик, (с · г ⁻¹ ²³⁵ U) ⁻¹	5,104	5,038	5,042	5,096	5,084	5,116	5,090	5,104	5,110	5,104	5,101	5,074	5,074
Нормированный отклик	1,002	0,989	0,989	1,000	0,998	1,004	0,999	1,002	1,003	1,002	1,001	0,996	0,996

Результаты, приведенные в табл. 6.4, показывают, что любой из четырех наборов стандартных образцов мог бы служить в качестве практических стандартных образцов для анализа любых других наборов для случая дальней геометрии. Некоторые процедуры с использованием гамма-излучения (например, сегментное сканирование в ближней геометрии) не так чувствительны к размерам и форме, как анализ в дальней геометрии. И все же относительно небольшой набор физических стандартных образцов обычно может использоваться для градуировки большинства систем анализа, использующих гамма-излучение.

6.9.4 Анализ раствора плутония-239 в ближней геометрии

Геометрия анализа, показанная на рис. 6.16, используется для анализа в ближней геометрии раствора ²³⁹Pu. Бутылка с образцом представляет собой цилиндр с площадью дна 10 см² и высотой 4,0 см. Максимальный объем образца равен 40 мл; однако типичные объемы образцов составляют только 25 мл. Образец находится на расстоянии всего около 5 см от торцевой крышки детектора, а расстояние до эффективной глубины взаимодействия равно 7 или 8 см. Такое расположение является ближней геометрией, что создает повышенные трудности при расчете коэффициента поправки CF(AT). В принципе, исследователь хотел бы увеличить расстояние от образца до детектора, чтобы упростить расчеты. К сожалению, это уменьшило бы скорость счета до того уровня, когда требуемое для измерения время было бы чрезмерно велико.

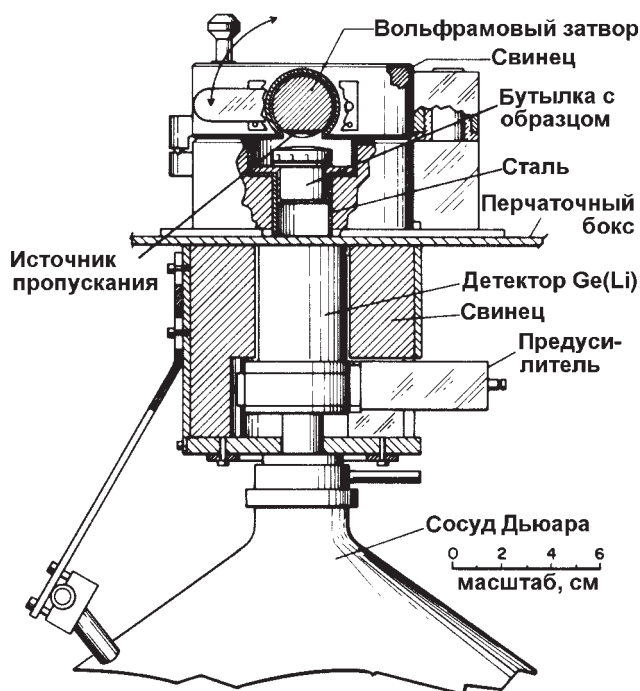


Рис. 6.16. Разрез установки, показывающий расположение детектора, образца и защиты. Установка использует ближнюю геометрию для анализа ^{239}Pu в растворах

Гамма-излучение ^{109}Cd с энергией 88,0 кэВ используется в качестве образцового (реперного) источника для определения поправок на мертвое время/наложения импульсов. Реперный источник жестко крепится к торцевой крышке детектора. Чтобы избежать интерполяции или экстраполяции плутониевый металлический диск используется в качестве источника для измерения коэффициента пропускания излучения, поэтому необходимо выполнить отдельные измерения для образца и образца с реперным источником и вычесть один результат из другого, чтобы получить значения коэффициента пропускания. При меньших концентрациях плутония более интенсивное гамма-излучение с энергией 129,3 кэВ дает более точные значения коэффициента пропускания и более точные результаты анализа, чем гамма-излучение с энергией 413,7 кэВ. При более высоких концентрациях гамма-излучение с энергией 413,7 кэВ с более высокой проникающей способностью дает более хороший сигнал в детекторе, более высокий коэффициент пропускания, и поэтому обеспечивает более точный анализ, чем гамма-излучение с энергией 129,3 кэВ. Средневзвешенная величина концентрации, полученная на основе измерения гамма-излучений с энергиями 129,3 и 413,7 кэВ, используется для конечного анализа, обеспечивая высокую точность измерений, которая постоянна в широком диапазоне концентраций.

Такая система анализа использует одномерную модель для расчета значения коэффициента $CF(AT)$, описанную в разделе 6.6.2. Расстояние от образца до де-

тектора является регулируемым параметром для получения общей скорректированной скорости счета от концентрации. При правильной регулировке и градуировке эта система измеряет содержание ^{239}Pu в растворах плутония с погрешностью менее 1 % для концентраций от 1 до 400 г Pu на литр. При времени измерения, равном 1000 с, как для образца, так и для образца с реперным источником погрешность составляет менее 1,0 % для концентраций > 1 г Pu на литр.

6.9.5 Сегментное сканирование с поправкой на пропускание излучения

В разделе 6.6.4 сегментное сканирование приводилось в качестве примера процедуры анализа, при которой относительно простая трехмерная модель могла бы использоваться для расчета коэффициента CF(AT). Этот раздел завершался обсуждением причин использования такой процедуры, а также некоторых реальных геометрий и комбинаций источников.

В процессе заполнения контейнеров скрапом или отходами часто возникают изменения объемной плотности по вертикали как для источника, так и для матрицы материала. Радиальная неоднородность часто менее выражена и ее влияние может быть существенно снижено за счет вращения образца. Даже тогда, когда существуют большие различия между слоями, внутри слоя в основном могут выполняться требования однородности. В этом случае анализ для контейнера может производиться как для вертикального штабеля частично перекрывающихся элементов. Преимущества процедуры сегментного сканирования получаются за счет потери некоторой степени чувствительности; поэтому система, использующая сегментное сканирование, вероятно, не должна использоваться для образцов, содержащих менее 1 г ^{239}Pu или ^{235}U .

На рис. 6.17 показано пространственное расположение детектора, коллиматора, анализируемого образца, источника излучения и реперного источника для системы, предназначенной для анализа содержания ^{239}Pu в цилиндрических контейнерах диаметром менее 20 см. На рисунке представлены также приближенные интенсивности излучений рабочего и реперного источников. На рис. 6.18 приведен общий вид установки для сегментного сканирования с использованием гамма-излучения (SGS).

Контейнер с образцом устанавливается по возможности близко к коллиматору для получения максимальной скорости счета и наилучшего пространственного разрешения при измерении сегмента. Перекрытие сегментов определяется размерами образца и коллиматора, а также относительными положениями сегментов. На рис. 6.17 коллиматор высотой 1,25 см и длиной 10 см обеспечивает приемлемое соотношение между чувствительностью и пространственной разрешающей способностью. Для бочек емкостью 113 и 208 литров приемлемым выбором является коллиматор высотой 5 и длиной 20 см. В последнем случае пространственная разрешающая способность не будет такой высокой, но она достаточна, чтобы обеспечить получение полезной информации о равномерности распределения материала. В качестве материала коллиматора обычно выбирается свинец. Если возникает проблема, связанная с объемом коллиматора, то может использоваться вольфрамовый сплав.

Для получения максимальной скорости счета детектор устанавливается по возможности ближе к коллиматору. При измерениях для плутония фильтр из

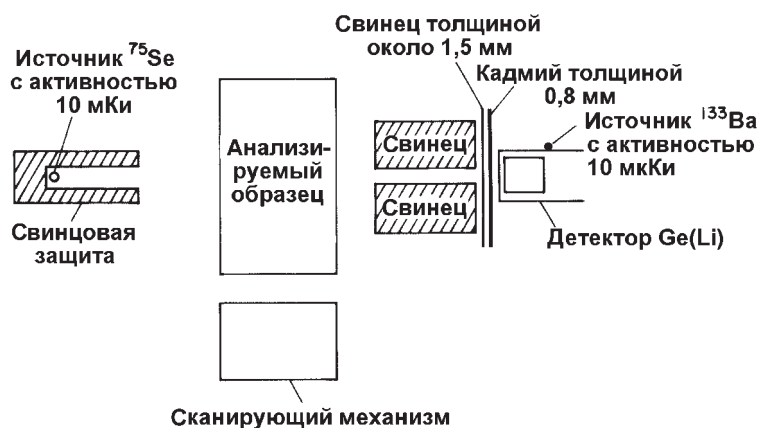


Рис. 6.17. Общее расположение элементов установки для посегментного гамма-сканирования с коррекцией на пропускание. Данная установка предназначена для анализа содержания ^{239}Pu в цилиндрических контейнерах

свинца (толщиной 1,5 мм) и кадмия (толщиной около 0,8 мм) уменьшает скорость счета при низких энергиях излучения ^{241}Am и убирает рентгеновское излучение, как для плутония, так и для свинца. При анализе ^{235}U достаточно использовать только кадмий, так как излучение ^{241}Am с энергией 60 кэВ не обнаружено в материалах, содержащих плутоний.

При анализе ^{239}Pu источником излучения пропускания является ^{75}Se , а реперным источником — ^{133}Ba . Около 10 мКи ^{75}Se обеспечивают достаточную интенсивность излучения, по крайней мере в течение 1 года, несмотря на относительно малый период полураспада. Источник такой активности должен находиться за экраном, чтобы избежать ненужного облучения персонала. Гамма-излучение ^{133}Ba с энергией 356,0 кэВ является реперным излучением; оно может также использоваться для стабилизации спектра, так как оно всегда присутствует в получаемом спектре. В этом случае удобным является период полураспада 10,4 года; один источник обычно служит на протяжении срока службы германиевого детектора. Источник активностью около 10 мКи может устанавливаться либо на передней, либо на боковой стороне торцевой крышки детектора; однако форма пика становится немного лучше, когда источник устанавливается с передней стороны торцевой крышки детектора по оси кристалла.

Существует несколько способов сегментного сканирования, известных как дискретное и непрерывное сканирование. При непрерывном сканировании вращающийся образец перемещается относительно коллиматора с постоянной скоростью. Время счета часто выбирается как время, которое требуется контейнеру для перемещения по высоте коллиматора. При дискретном сканировании образец устанавливается вертикально, выполняется измерение, образец передвигается, снова производится измерение и т.д. Такой режим работы позволяет избежать «микроакустического» эффекта детектора, который вызывается вибрацией системы вертикального привода. На практике интервал между сегментами, равный половине высоты коллиматора, обеспечивает хорошую работу и может быть рекомендован как эмпирически подобранный. Режим непрерывного сканирования обычно дает более хорошие результаты для среднего значения коэффициента



Рис. 6.18. Система SGS для сканирования бочек емкостью 55 галлонов

пропускания сегмента. Однако дискретное сканирование обычно легче осуществить. Такой режим также пригоден для измерений за два прохода, при которых измерение производится один раз с открытым источником излучения пропускания, а другой раз — при закрытом затворе источника. Схема с двумя проходами удобна, когда требуются высокие чувствительность и точность, и в частности удобно, когда в качестве источника излучения пропускания используется ^{169}Yb при анализе содержания ^{235}U . Возможны другие варианты применения процедуры сегментного сканирования, и они описаны в работах [14] и [15].

ЛИТЕРАТУРА

1. *American National Standard Guide to Calibrating Nondestructive Assay Systems*, ANSI N 15.20-1975 (American National Standards Institute, New York, 1975).
2. J. L. Parker, "The Use of Calibration Standards and Correction for Sample Self-Attenuation in Gamma-Ray Nondestructive Assay" Los Alamos National Laboratory report LA-10045 (August 1984).
3. J. H. Hubbell, "Photon Cross Sections, Attenuation Coefficients, and Energy Absorption Coefficients from 10 keV to 100 GeV," National Bureau of Standards report NSRDS-NBS 29 (August 1969).
4. J. P. Francois, "On the Calculation of the Self-Absorption in Spherical Radioactive Sources," *Nuclear Instruments and Methods* 117, 153-156 (1974).

5. J. L. Parker, "A Correction for Gamma-Ray Self-Attenuation in Regular Heterogeneous Materials," Los Alamos National Laboratory report LA-8987-MS (September 1981).
6. J. L. Parker and T. D. Reilly, "Bulk Sample Self-Attenuation Correction by Transmission Measurement," Proc. ERDA X- and Gamma-Ray Symposium, Ann Arbor, Michigan, May 19-21, 1976 (Conf. 760539).
7. W. H. McMaster, N. Kerr Del Grande, J. H. Mallett, and J. H. Hubbell, "Compilation of X-Ray Cross Sections," Lawrence Radiation Laboratory report UCRL-50174, Sec. II, Rev. 1 (1969).
8. J. E. Cline, "A Technique of Gamma-Ray Detector Absolute Efficiency Calibration for Extended Sources," Proc. American Nuclear Society Topical Conference on Computers in Activation Analysis and Gamma Ray Spectroscopy, Mayaguez, Puerto Rico (1978), pp. 185-196 (Conf. 780421).
9. "Self-Shielding Correction for Photon Irradiation of Slab and Cylindrical Samples," Gulf General Atomic, Inc., Progress Report GA-9614 (July I, 1968-June 30, 1969).
10. *Handbook of Mathematical Functions With Formulas, Graphs, and Mathematical Tables*, Milton Abramowitz and Irene A. Stegun, Eds., National Bureau of Standards, Applied Mathematics Series 55 (1970).
11. Yardley Beers, *Introduction to the Theory of Error* (Addison-Wesley Publishing Co., Inc., Reading, Massachusetts, 1962).
12. Philip R. Bevington. *Data Reduction and Error Analysis for the Physical Sciences* (McCraw-Hill Book Company, New York. 1969).
13. *Handbook of Nuclear Safeguards Measurement Methods*, Donald R. Rogers, Ed., NUREG/CR-2078, MLM-2855 (US Nuclear Regulatory Commission, Washington, DC, 1983).
14. E. R. Martin, D. F. Jones, and J. L. Parker, "Gamma-Ray Measurements with the Segmented Gamma Scan," Los Alamos Scientific Laboratory report LA-7059-M (December 1977).
15. American Society For Testing and Materials, "Standard Test Method for Nondestructive Assay of Special Nuclear Material in Low-Density Scrap and Waste by Segmented Passive Gamma-Ray Scanning," Vol. 12.01, C853-82, 1989, p. 366, ASTM, Philadelphia.

Глава 7

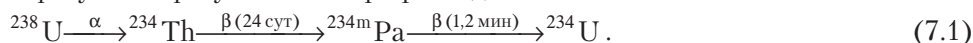
Измерение обогащения урана

Хэйстингс А. Смит, мл.
(Переводчик И. Н. Сазонов)

7.1 ВВЕДЕНИЕ

Образцы урана и плутония в ядерном топливном цикле представляют собой смеси изотопов с широким диапазоном содержаний, поэтому изотопный состав образцов часто служит объектом измерений (см. главу 8). В этой главе мы рассмотрим специальный случай изотопного анализа: определение удельного содержания изотопов в образце посредством радиационных измерений, которые наиболее часто применяются для определения содержания делящегося изотопа ^{235}U в образцах урана. Его содержание обычно называют "обогащением урана". Термин "обогащение" используется потому, что содержание ^{235}U в материалах топливного цикла обычно выше, чем в природном уране.

В природе преобладают три изотопа урана (в круглых скобках приведено содержание атомов этих изотопов): ^{238}U (99,27 %), ^{235}U (0,720 %) и ^{234}U (0,006 %). ^{234}U образуется в результате альфа-распада ^{238}U :



Если образец получен в реакторе, в нем также могут присутствовать другие изотопы урана, включая ^{236}U , получаемый в результате захвата нейтрона ядром ^{235}U , и ^{237}U из реакции $(n,2n)$ на ядрах ^{238}U .

"Атомарное содержание" ^{235}U в уране определяется следующим выражением:

$$E_a (\text{ат.}\%) = \frac{\text{Число атомов } ^{235}\text{U}}{\text{Число атомов U}} \times 100\%. \quad (7.2)$$

Обогащение так же может быть выражено как "весовое содержание":

$$E_w (\text{вес.}\%) = \frac{\text{Количество граммов } ^{235}\text{U}}{\text{Количество граммов U}} \times 100\%. \quad (7.3)$$

Две величины обогащения соотносятся как

$$E_w (\text{вес.}\%) = \frac{235E_a}{238 - 0,03E_a} \approx \frac{235}{238} E_a. \quad (7.4)$$

Обогащение урана в топливе для легководных реакторов LWR (Light Water Reactor) обычно составляет несколько процентов. Реакторы типа CANDU (Canadian Deuterium-Uranium reactor) используют природный уран, а материаловедческие реакторы MTR (Materials Testing Reactor) — высокообогащенный уран (обогащение от 20 до 90 %). Определение обогащения урана в образцах является ключевым измерением в технологических процессах и при контроле продукции на предприятиях по обогащению урана и изготовлению ядерного топлива, а так-

же играет очень важную роль при международных инспекциях по ядерным гарантиям для подтверждения использования уранового топлива в мирных целях.

Принципы измерения обогащения могут быть использованы для определения содержания любых изотопов, если известны их радиационные характеристики и удовлетворяются некоторые специальные условия измерений. Далее приводится описание различных методик измерения обогащения и их применение.

7.2 ИЗЛУЧЕНИЕ ОБРАЗЦОВ УРАНА

Изотопы урана испускают альфа-, бета-, нейтронное и гамма-излучения. Основным излучением, используемым при пассивном неразрушающем анализе образцов урана, является гамма-излучение, которое обычно преобладает при распаде ^{235}U . Однако для образцов урана низкого обогащения наиболее интенсивным компонентом в спектре излучения является рентгеновское излучение. При измерении обогащения ^{235}U наиболее часто используется линия гамма-излучения с энергией гамма-квантов 186 кэВ. Она является самой выделенной одиночной линией гамма-излучения для любых образцов урана с обогащением по ^{235}U выше природного уровня. Обычно интерференции спектральных линий нет, кроме случая регенерированного топлива, в котором гамма-кванты с энергией 236 кэВ изотопа ^{212}Pb , дочернего продукта ^{232}Th , обычно накладываются на линию ^{235}U . В табл. 7.1 приведены наиболее интенсивные гамма-линии интересующих изотопов урана [1]. Данные по альфа- и нейтронному излучению изотопов урана также могут быть найдены в [1]. На рис. 7.1 [1] и рис. 7.2 [2] приведены спектры гамма-квантов образцов урана разной степени обогащения, измеренные гамма-детекторами низкого и высокого разрешения, соответственно.

7.3 МЕТОДИКА ГАММА-ИЗМЕРЕНИЙ БЕСКОНЕЧНЫХ ОБРАЗЦОВ

Метод определения обогащения урана по гамма-излучению [3-5] впервые был применен для контроля баллонов с UF_6 [6]. Основная методика измерения включает в себя регистрацию излучения образца урана через канал коллиматора детектором гамма-излучения (рис. 7.3). Обогащение определяется по интенсивности гамма-квантов изотопа ^{235}U с энергией 186 кэВ. Если образец достаточно толстый, то детектора достигают гамма-кванты с энергией 186 кэВ только от части общего объема образца, ввиду сильного поглощения квантов этой энергии в типичных материалах, в которых содержится уран. "Видимый объем" образца определяется коллиматором, геометрией детектора и длиной свободного пробега излучения с энергией 186 кэВ в материале образца. Его размер (показан на рис. 7.3 пунктирной линией) не зависит от обогащения, т.к. различные изотопы урана имеют сходные поглощающие свойства. Если глубина образца вдоль оси коллиматора намного больше, чем длина свободного пробега квантов с энергией 186 кэВ в материале образца, то все образцы со сходным физическим составом будут представлены одним и тем же видимым объемом. Это является критерием так называемой "бесконечной" толщины. В табл. 7.2 приведены длина свободного пробега и величина "бесконечной" толщины для гамма-квантов с энергией 186 кэВ в обычно встречающихся урановых смесях. Для многих урановых мате-

риалов критерий "бесконечной" толщины удовлетворяется при достаточно малых толщинах образцов урана. Однако, поскольку мы заглядываем внутрь образца не глубже, чем на определенное расстояние, указанное в табл. 7.2, измерения обогащения по гамма-излучению часто относятся только к *поверхности* уранового материала. Таким образом, чтобы измерение обогащения было значимым для всего образца, материал должен быть однородным по изотопному составу.

Таблица 7.1 – Гамма-излучение изотопов урана [1]

Изотоп	Энергия гамма-излучения, кэВ	Удельная интенсивность, квант/с·г изотопа
^{232}U	129,1	$6,5 \times 10^8$
	270,5	$3,0 \times 10^7$
	327,8	$2,7 \times 10^7$
^{233}U	119,0	$3,9 \times 10^4$
	120,8	$3,2 \times 10^4$
	146,4	$6,6 \times 10^4$
	164,6	$6,4 \times 10^4$
	245,3	$3,8 \times 10^4$
	291,3	$5,8 \times 10^4$
	317,2	$8,3 \times 10^4$
^{234}U	120,9	$5,4 \times 10^5$
^{235}U	143,8	$7,8 \times 10^3$
	163,4	$3,7 \times 10^3$
	185,7	$4,3 \times 10^4$
	202,1	$8,0 \times 10^2$
	205,3	$4,0 \times 10^3$
^{238}U в равновесии с $^{234\text{m}}\text{Pa}$	742,8	7,1
	766,4	$2,6 \times 10^1$
	786,3	4,3
	1001,0	$7,5 \times 10^1$

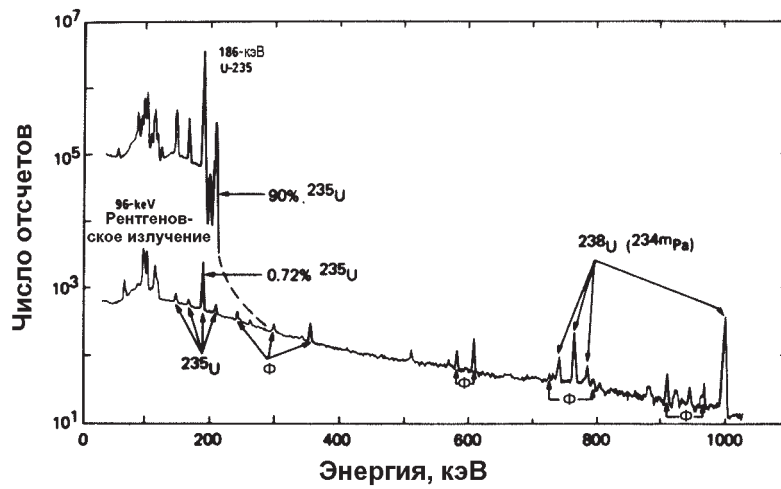


Рис. 7.1. Спектры гамма-излучения природного урана (0,7 % ^{235}U) и урана 90 %-ного обогащения, измеренные незранированным $\text{Ge}(\text{Li})$ детектором с эффективностью 14 %. Пики, обозначенные ^{238}U ($^{234\text{m}}\text{Pa}$) — от распада $^{234\text{m}}\text{Pa}$. Фоновые пики обозначены Φ . Обратите внимание на преобладание в спектре пика с энергией 186 кэВ от распада ^{235}U [1]

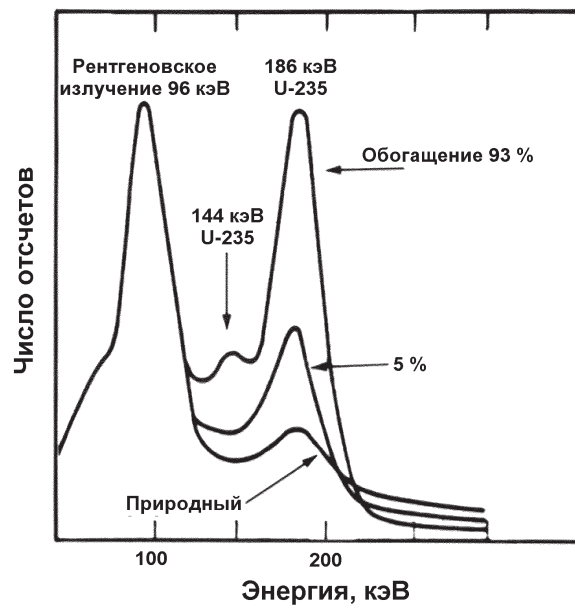


Рис. 7.2. Спектры гамма-излучения образцов урана: природного, 5 и 93 %-ного обогащения, измеренные сцинтилляционным детектором $\text{NaI}(\text{Tl})$. При увеличении обогащения по ^{235}U пик излучения с энергией 186 кэВ становится более интенсивным, а фон (от продуктов распада ^{238}U) с энергией выше пика ослабевает [2]

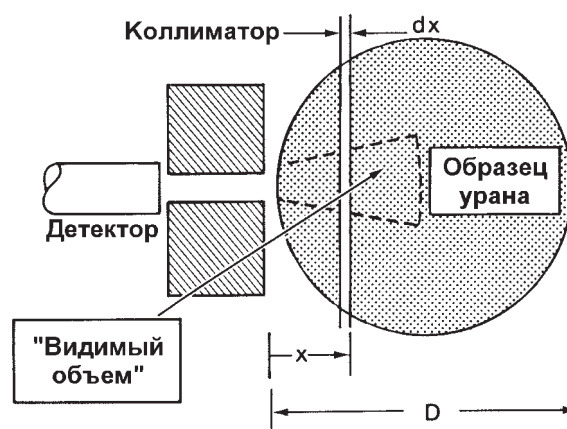


Рис. 7.3. Основные части установки для измерения обогащения урана по гамма-излучению. С целью наглядности размеры "видимого объема" увеличены относительно размеров детектора и коллиматора. Обычно глубина "видимого объема" гораздо меньше, чем расстояние от источника до детектора

7.3.1 Однокомпонентная задача (металлический уран)

Для заданной геометрии детектор-коллиматор все образцы из чистого металлического урана имеют одинаковый "видимый" объем, поскольку длина свободного пробега гамма-квантов с энергией 186 кэВ одна и та же для каждого образца. В результате, детектор "видит" излучение ^{235}U одного и того же количества урана, независимо от толщины образца. Интенсивность излучения с энергией 186 кэВ, хотя и сильнопоглощаемого, пропорциональна числу атомов ^{235}U в видимом объеме, т.е. пропорциональна его *атомарному* содержанию в образце.

Таблица 7.2 – Средняя длина пробега и "бесконечная" толщина для квантов с энергией 186 кэВ в урановых соединениях

Соединение урана	Плотность ρ , г/см ³	Средняя длина пробега, см*	"Бесконечная" толщина, см**
Металл	18,7	0,04	0,26
UF ₆ (твердый)	4,7	0,20	1,43
UO ₂ (спеченный)	10,9	0,07	0,49
UO ₂ (порошок)	2,0	0,39	2,75
U ₃ O ₈ (порошок)	7,3***	0,11	0,74
Уранилнитрат	2,8	0,43	3,04

* Равна $1/\mu_r$ при 186 кэВ для рассматриваемого материала.

** Определяется как семь средних длин пробега, т.е. расстояние, для которого погрешность в определении размера "бесконечного" образца менее, чем 0,1 % (см. уравнение (7.8)).

*** Уплотненный порошок.

7.3.2 Двухкомпонентная задача (уран и материал матрицы)

Типичный обогащенный образец состоит из урана и материала матрицы (обычно с низким атомным номером Z). Геометрия измерений обычно та же, что показана на рис. 7.3, но дополнительным фактором в измерениях является поглощение в материале матрицы. Исчерпывающая сводка теоретических обоснований такого типа измерений дана в [7,8]. Ниже приведены ключевые математические результаты, необходимые для анализа измерений обогащения.

Рассмотрим измерение гамма-излучения двухкомпонентного образца толщиной D , когда расстояние от образца до детектора велико по сравнению с глубиной видимого объема. Эта особенность позволяет пренебречь эффектами порядка $1/r^2$ при интегрировании по объему образца. Скорость счета от бесконечно малой части образца (см. рис. 7.3) дается выражением:

$$dR = \varepsilon E_w S dm_U \exp(-\mu_r x) \exp(-\mu_c \rho_c t_c), \quad (7.5)$$

где $dm_U = A \rho_U dx$;

ε – эффективность регистрации при данной энергии;

E_w – обогащение урана, *весовые* проценты (см. уравнение (7.3));

A – площадь канала коллиматора;

S – удельная активность гамма-излучения с энергией 185,7 кэВ (см. табл. 7.1);

$\mu_c \rho_c$ – линейный коэффициент поглощения квантов данной энергии в контейнере для образца;

t_c – толщина одной стенки контейнера для образца.

Величина μ_r представляет собой линейный коэффициент поглощения квантов в смеси урана U и матрицы m при данной энергии:

$$\mu_r = \mu_U \rho_U + \mu_m \rho_m. \quad (7.6)$$

Интегрирование уравнения (7.5) по толщине образца дает полную скорость счета для энергии 186 кэВ:

$$R = \varepsilon E_w S A \rho_U \exp(-\mu_c \rho_c t_c) \int_0^D \exp(-\mu_r x) dx, \quad (7.7)$$

которое преобразовывается к виду

$$E_w = \left[\frac{\mu_U}{\varepsilon S A} \right] R \left[\frac{F \exp(\mu_c \rho_c t_c)}{1 - \exp(-\mu_r D)} \right], \quad (7.8)$$

$$\text{где } F = 1 + (\mu_m \rho_m / \mu_U \rho_U). \quad (7.9)$$

Если толщина образца D достаточно велика, тогда величина экспоненты в знаменателе уравнения (7.8) пренебрежимо мала по сравнению с единицей, делая несущественным изменения размеров образца. Это является основой подхода "бесконечной" толщины. Первая скобка в уравнении (7.8) содержит коэффициенты, зависящие только от характеристик прибора (ε и A) и собственных свойств урана (μ_U и S), и, таким образом, устанавливает основную градуировочную постоянную измерений. Если исследуемый и стандартный образец для градуировки имеют идентичные контейнеры, тогда величина $\exp(\mu_c \rho_c t_c)$ может быть введена в

градуировочную постоянную; в ином случае эта величина должна быть использована для введения поправки на контейнер (см. раздел 7.7).

Коэффициент F в уравнении (7.8) отражает эффекты матрицы образца. Если стандартный и исследуемый образцы обладают одними и теми же свойствами матрицы, то этот коэффициент может быть включен в градуировочную постоянную. Если коэффициент F для матрицы исследуемого образца отличается от коэффициента F_s для матрицы стандартного образца, тогда также необходима небольшая поправка на это различие. В табл. 7.3 приведены значения коэффициента поправки F/F_s для различных соединений урана [2].

Таблица 7.3 – Коэффициент поправки F/F_s на состав материала [2]

Ядерный материал стандартного образца (коэффициент F_s)	Измеряемый ядерный материал (коэффициент F)					
	U	UC	UC ₂	UO ₂	U ₃ O ₈	UF ₆
U (100 %)	1,00	1,00	1,00	1,01	1,01	1,04
UC (95 % U)	1,00	1,00	1,00	1,01	1,01	1,03
UC ₂ (91 % U)	0,99	1,00	1,00	1,00	1,01	1,03
UO ₂ (88 % U)	0,99	0,99	1,00	1,00	1,00	1,03
U ₃ O ₈ (85 % U)	0,99	0,99	0,99	1,00	1,00	1,02
UF ₆ (68 % U)	0,96	0,97	0,97	0,98	0,98	1,00
Нитрат U (47 % U)	0,92	0,92	0,93	0,93	0,93	0,95

7.3.3 Аппаратура и методика для бесконечных образцов. Применение

Основной измерительной аппаратурой является коллимированный детектор гамма-излучения и соответствующая электроника. В раннем варианте такая аппаратура включала прибор SAM-II (Stabilized Assay Meter) и сцинтилляционный детектор NaI(Tl) [6]. Импульсы гамма-квантов анализировались двухканальным анализатором, одно окно которого было настроено на область энергии 186 кэВ (C1 на рис. 7.4), а другое окно настроено на область фона выше исследуемого пика (C2 на рис. 7.4).

Обогащение урана пропорционально *чистой* скорости счета в пике 186 кэВ (R в уравнении (7.8)), которая дается выражением:

$$R = C1 - f \cdot C2 . \quad (7.10)$$

Эта формула представляет собой вычитание фона из общего счета в выбранной области пика с энергией 186 кэВ. Основной вклад в фон вносят высокоэнергетические гамма-кванты дочерних продуктов распада ²³⁸U, которые испытывают комптоновское рассеяние в детекторе. Хотя число отсчетов C2 прямо не относится к анализируемому пику, оно используется для определения уровня фона в близкой области энергии, а затем переносится на исследуемый пик с помощью спектрального множителя f , который должен определяться при градуировке. По-

сколько обогащение (как атомарное, так и весовое) пропорционально чистой скорости счета R , мы имеем

$$E = a \cdot R \cdot F \cdot \exp(\mu_c \rho_c t_c) = F \cdot \exp(\mu_c \rho_c t_c) (a \cdot C1 - a \cdot f \cdot C2). \quad (7.11)$$

Градуировочная постоянная включает все геометрические факторы и константы, характеризующие свойства урана, из уравнения (7.8). Коэффициент матрицы F и коэффициент поправки на ослабление в стенке контейнера $\exp(\mu_c \rho_c t_c)$ очень важны, когда стандартный и исследуемый образцы изготовлены из различных материалов или упакованы в разные контейнеры. Если измерения выполняются на материалах одного и того же вида, упакованных в контейнер одного типа, то множитель $F \exp(\mu_c \rho_c t_c)$ может быть включен в градуировочную постоянную. Тогда обогащение через измеряемые величины $C1$ и $C2$ записывается в виде

$$E = a \cdot C1 + b \cdot C2. \quad (7.12)$$

Градуировочные постоянные a и b ($= -a \cdot f$) в этом случае учитывают ослабление в контейнере и характеристики матрицы. Они определяются путем измерения двух стандартных образцов с известными величинами обогащения E_1 и E_2 .

При использовании аппаратуры SAM-II градуировочные постоянные вводятся в сигналы двух одноканальных анализаторов через цифровые множители частоты. Реверсивный пересчетный прибор показывает разницу между масштабированными величинами $C1$ и $C2$, т.е. показывает обогащение урана. На газодиффузионном заводе в Портсмуте был установлен встроенный измеритель SAM-II [9]. Он находится в эксплуатации более 12 лет и продолжает контролировать выход продукции (жидкого UF_6) с относительной погрешностью 0,25 % (1σ). Аппаратура была разработана для непрерывного определения как обогащения ^{235}U (по гамма-измерениям), так и обогащения ^{234}U (по нейтронным измерениям; см. раздел 7.6 и главу 15). Изображение гамма-измерительной части аппаратуры приведено на рис. 7.5.

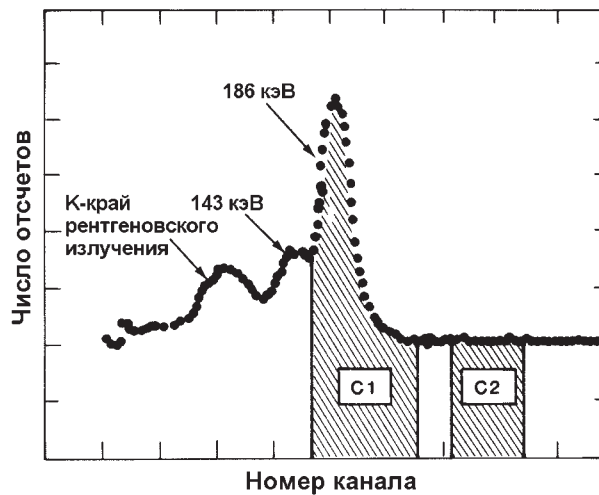


Рис. 7.4. Спектр гамма-излучения урана, измеренный детектором с низким разрешением, показывающий две энергетические области, используемые при измерении обогащения

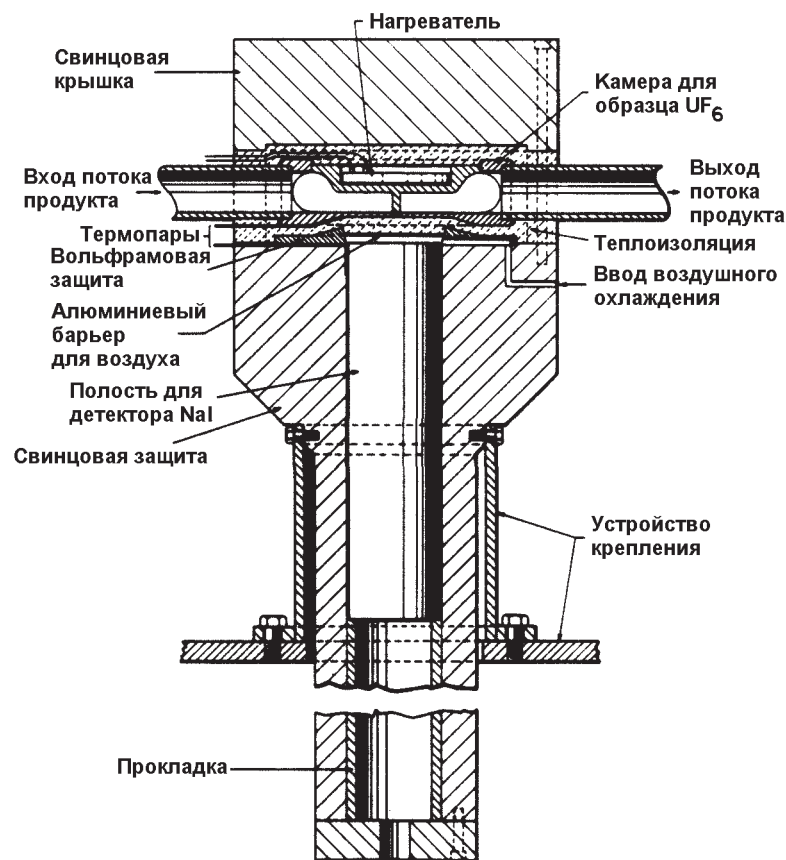


Рис. 7.5. Детектор и устройство защиты измерителя обогащения на газодиффузионном заводе в Портсмуте (США). Жидкий продукт UF_6 протекает через камеру, где измеряется интенсивность гамма-излучения с энергией 186 кэВ для определения обогащения UF_6 [9]

В более современном оборудовании [10] используется портативный, с батарейным питанием микропроцессорный многоканальный анализатор с детектором NaI (рис. 7.6). Аппаратура регистрирует полный спектр урана, интегрирует количество отсчетов в выбранных областях, соответствующих окнам С1 и С2 (например, как на рис. 7.4), рассчитывает обогащение и его статистическую неопределенность и представляет результаты на буквенно-цифровом дисплее. В программное обеспечение аппаратуры также включена методика градуировки по двум параметрам с помощью двух стандартных образцов. Подобная методика используется при обычных проверках обогащения на установках некоторых заводов [11]. Эти гамма-спектрометрические методики используются во многих внутризаводских и полевых условиях применения, включая измерения UF_6 в накопительных емкостях. Как и в более ранних методиках, во многих современных применениях все еще используется детектор NaI [6]. Однако для исключения проблемы наложения излучения дочерних продуктов распада ^{238}U , отложившихся на внутренней поверхности контейнеров, более эффективна спектрометрия с высо-



Рис. 7.6. Оборудование для измерения обогащения урана по гамма-излучению, включающее портативный микропроцессорный многоканальный анализатор и детектор гамма-излучения NaI(Tl). Аппаратура может питаться от батарей и пригодна для применения в полевых условиях

ким разрешением на базе полупроводниковых детекторов. Детектор высокого разрешения особенно полезен, когда химические процессы приводят к концентрированию дочерних продуктов ^{238}U в отложениях или в самом урановом материале. В некоторых производственных процессах наблюдается десятикратное увеличение концентрации дочерних продуктов ^{238}U . Излучение дочерних продуктов создает высокий комптоновский фон в детекторе, который может затруднять выделение пика 185,7 кэВ.

Заслуживает внимания тот факт, что иногда требования методики "бесконечной" толщины соблюдаются не строго, что имеет место при измерениях, выполняемых аналитическими химическими лабораториями некоторых топливных производств, например, фирмы "Дженерал Электрик" в Уилмингтоне, штат Северная Каролина (США). Небольшие пробы технологических материалов растворяются и приготавливаются в виде разбавленных водных образцов уранилнитрата в стандартных ампулах. Дочерние продукты ^{238}U удаляются из раствора перед измерением. Эти образцы помещают в детектор NaI с колодцем и проводят измерения путем сравнения с тщательно подобранными стандартными образцами изотопов. Эта методика может обеспечить очень точный (0,1 – 0,2 %) контроль обогащения урана. Фирма "Дженерал Электрик" ежегодно проводит с использованием этой методики измерения нескольких тысяч образцов.

7.4 МЕТОДИКИ АНАЛИЗА ПО ОТНОШЕНИЮ ПИКОВ

7.4.1 Теория

Для произвольных "небесконечных" образцов (например, тонкой фольги, отложений загрязнений или разбавленных растворов) при определении обогащения очень трудно корректировать интенсивность гамма-излучения с энергией 186 кэВ на поглощение. Эта трудность возникает вследствие того, что множитель $[1 - \exp(-\mu\rho D)]$ в уравнении (7.8) нельзя оценить точно. Методика отношения пиков требует измерить *отношения* интенсивностей гамма-излучения основных изотопов и использовать эту информацию для определения обогащения урана. Методика, в основном, идентична методике изотопного анализа плутония, описанной в главе 8. В простейшем случае низкого обогащения по ^{235}U , изотопы ^{235}U и ^{238}U , в сущности, являются единственными компонентами образца. Т.к. сумма их изотопных содержаний f в этом случае равна единице, атомарное содержание ^{235}U (возвращаясь к уравнению (7.2)) составляет

$$E_a = f_{235} = N(235) / [N(235) + N(238)] = (1 + f_{238} / f_{235})^{-1}. \quad (7.13)$$

Если в образце присутствуют в значимых количествах изотопы ^{234}U или ^{236}U , можно измерить другие отношения гамма-пиков от этих изотопов. Тогда выражение для атомарного содержания ^{235}U должно включать в себя эти другие отношения (см. в главе 8 для примера изотопный анализ плутония).

Трудным вопросом в методике отношения пиков является определение изотопного отношения f_{238}/f_{235} . Наиболее интенсивными пиками гамма-излучения ^{238}U являются пики от его дочернего изотопа $^{234\text{m}}\text{Pa}$, находящиеся в энергетическом диапазоне от 700 до 1000 кэВ (см. табл. 7.1). Большая разница энергии между гамма-квантами $^{234\text{m}}\text{Pa}$ (^{238}U) и гамма-квантами 186 кэВ от ^{235}U делает необходимой существенную поправку на отличие относительной эффективности детектора, включая поглощение квантов в материалах образца и контейнера. Построение графика относительной эффективности как функции энергии требует измерения интенсивности известных пиков в заданном энергетическом диапазоне (см. в главе 8 детальное рассмотрение, относящиеся к изотопному анализу плутония). Для измерений обогащений урана необходимо определить скорости счета для нескольких гамма-пиков от двух основных изотопов (^{235}U и ^{238}U) и нормировать результаты измерений на общую кривую эффективности.

7.4.2 Применения

В одном из применений этой методики нормировочный коэффициент k между кривыми относительной эффективности для интенсивностей гамма-излучения ^{235}U и ^{238}U определяется методом последовательных приближений [12]. Тогда атомарное содержание в уравнении (7.13) равно

$$E_a = [1 + k(\lambda_{235} / \lambda_{238})]^{-1}, \quad (7.14)$$

где λ_a — постоянная времени радиоактивного распада для изотопа с массой A ;
 k — отношение активностей двух интересующих изотопов, определенное методом последовательных приближений:

$$k = A(^{238}\text{U}) / A(^{235}\text{U}). \quad (7.15)$$

При построении кривой относительной эффективности учитывают слабые пики гамма-излучения 258,3 кэВ от ^{234m}Pa и 63,3 кэВ от ^{234}Th для распространения данных по эффективности к гамма-излучению продуктов распада ^{238}U на область энергии, в которой преобладают гамма-кванты ^{235}U .

Аналогичный способ был применен [13-16] для спектрометрии гамма-излучения с высоким разрешением в узком диапазоне энергии от 89 до 99 кэВ. В одном из подходов [13-15] для изотопных измерений были использованы линии, расположенные в области от 92,4 до 93,4 кэВ: интенсивности линий 92,4 и 92,8 кэВ от ^{234}Th были использованы в качестве меры концентрации ^{238}U в образце, а линия тория $K_{\alpha 1}$ с энергией 93,35 кэВ применялась как мера концентрации ^{235}U . Вклад ^{238}U в линию 93,35 кэВ был учтен при градуировке. Рентгеновская K_{α} -линия урана использовалась при градуировке по энергии и эффективности. При лабораторных исследованиях было достигнуто согласие с результатами масс-спектроскопического анализа лучше, чем 1 %. При другом подходе [16] использовалась рентгеновская K-линия 89,9 кэВ тория от распада ^{235}U и дублет 92 кэВ гамма-излучения ^{234}Th ; результаты согласуются со стандартными величинами в пределах 1 %.

Оба способа использования областей низкоэнергетических пиков основываются на равновесии между дочерним ^{234}Th и материнским ^{238}U изотопами. Т.к. период полураспада изотопа ^{234}Th составляет 24 дня, равновесие обычно достигается через период времени от 120 до 168 дней (97 и 99 % от равновесной активности, соответственно) после химического разделения. Узкий энергетический диапазон снижает до минимума неопределенность зависящей от энергии относительной эффективности регистрации фотопиков, а предварительное определение этой эффективности для каждого образца делает эту методику измерения обогащения менее зависимой от знания материала матрицы. Однако ни одна низкоэнергетическая методика до сих пор не нашла подходящей области применения.

7.4.3 Выводы по методикам отношения пиков

Описанные выше методы имеют преимущество в том, что измеряется *отношение* пиков. Это позволяет определять обогащение урана без использования стандартных образцов обогащения или без определения зависящих от геометрии измерения градуировочных постоянных. При этом образцы не обязаны удовлетворять критерию "бесконечной" толщины. Кроме того, поправки на относительную эффективность делаются для каждого образца и включают поглощение не только в материале образца, но и в контейнере и во всех внешних поглотителях. Измерения изотопного состава плутония, описанные в главе 8, имеют те же самые преимущества. Недостатками этой методики являются:

- низкая интенсивность излучения дочерних продуктов ^{238}U для высокоэнергетического метода;
- необходимость установления векового равновесия между ^{238}U и его дочерними продуктами;
- необходимость изотопной однородности образца.

Необходимость изотопной однородности проявляется в случаях, когда в контейнере наряду с измеряемым материалом может оказаться остаток материала от

других образцов, например, при измерении баллонов с UF_6 , в которых уран от предыдущих партий может отложиться на стенках баллона.

Методы определения обогащения урана по отношению пиков могут, в принципе, также применяться для "бесконечных" образцов. Однако в этих случаях методы отношения пиков более трудоемки и продолжительны и обычно не имеют преимуществ перед другими методиками измерения обогащения, которые проще, быстрее и менее дороги.

7.5 МЕТОДИКИ ИЗМЕРЕНИЯ ОБОГАЩЕНИЯ УРАНА В ГАЗОВОЙ ФАЗЕ

Предельным случаем определения обогащения в "небесконечном" образце является измерение UF_6 в газовой фазе. В одной из методик [17-20] концентрация ^{235}U определялась путем измерения скорости R испускания гамма-квантов с энергией 186 кэВ при распаде ^{235}U , а общая концентрация урана — по измерению коэффициента пропускания T_{60} через газообразный UF_6 гамма-квантов с энергией 60 кэВ от внешнего источника ^{241}Am . На рис. 7.7 показаны система измерения с детектором $NaI(Tl)$ и измерительной камерой и расположение источника ^{241}Am . Атомарное содержание E_a соотносится с измеряемой скоростью счета R квантов 186 кэВ по формуле

$$E_a = R / (C \ln T_{60}), \quad (7.16)$$

где R была откорректирована на потери от мертвого времени и ослабления в газе, C — градуировочная постоянная, а $\ln(T_{60})$ пропорционален общему содержанию урана в образце.

Т.к. измерение учитывает изменения плотности UF_6 , анализ не зависит от давления UF_6 . Этот метод имел результаты контроля с погрешностью измерения лучше, чем 1 % относительных в диапазоне обогащения UF_6 от 0,72 до 5,4 % используя одноточечную градуировку. Для UF_6 с обогащением 1,0 % при давлении 700 мм рт.ст. получена относительная погрешность 0,74 % при времени измерения 1000 с [19]. Эта методика применялась при относительно высоких давлениях UF_6 . В этом случае в сигнале преобладало излучение от газообразного UF_6 , а вклад от отложений урана на внутренней поверхности камеры для образца был незначителен. При испытаниях и оценке этого прибора в 1982 г. на линии питающего продуктопровода газодиффузионного завода в Ок-Ридже использовался детектор гамма-излучения $NaI(Tl)$. Прибор был модернизирован для регистрации гамма-квантов с высоким разрешением и испытан в 1983 г. Прототип прибора с высоким разрешением [20, 21] для газодиффузионного обогатительного завода в Портсмуте был создан и испытан в Ок-Ридже в 1984 г. (см. рис. 7.8).

При низких давлениях UF_6 (например, десятки мм рт.ст.) плотность газообразного UF_6 является недостаточно большой для того, чтобы измерение пропускания имело удовлетворительную точность. Кроме того, излучение от материала, отложившегося на поверхности контейнера, становится значительной частью общего сигнала, и тогда для получения точных результатов требуется тщательный учет наложений. Метод пассивного счета гамма-квантов и метод активной рентгенофлюоресценции были скомбинированы для приблизительной оценки обога-

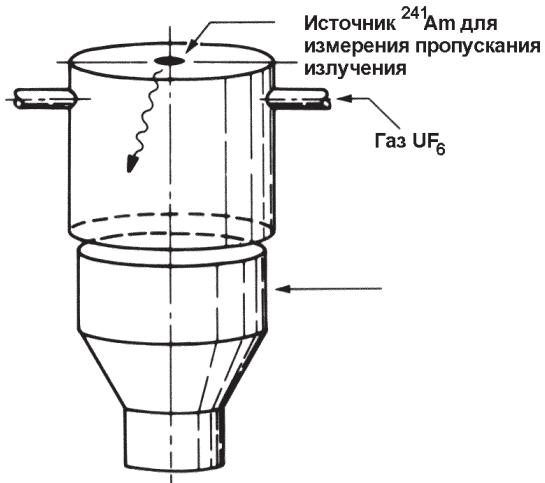


Рис. 7.7. Прибор для контроля обогащения UF_6 в газовой фазе на основе детектора NaI(Tl) , который регистрирует гамма-кванты с энергией 60 кэВ от источника ^{241}Am (при измерении пропускания) и 186 кэВ из камеры образца (при определении ^{235}U) [18]

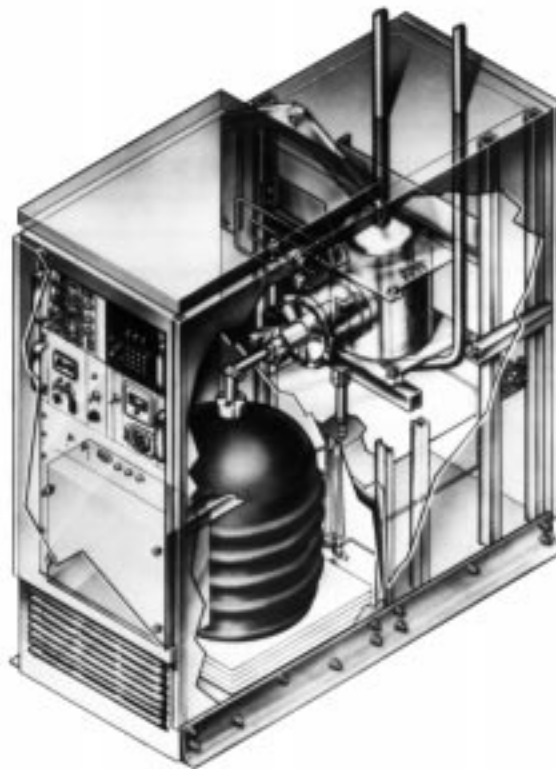


Рис. 7.8. Отсек установки контроля обогащения газообразного UF_6 для газодиффузионного обогатительного завода в Портсмуте. В половине отсека размещен детектор с электроникой, а вторая половина содержит нагревательную камеру для UF_6 и остальные приборы [21]

щения газообразного UF_6 низкого давления на трубопроводе головного каскада [22-26]. Измерялась интенсивность гамма-излучения распада ^{235}U (186 кэВ) и дочерних продуктов ^{238}U в отложениях на трубопроводе и от газообразного UF_6 для определения содержания ^{235}U в газе. Поправка на излучение от урана, отложившегося на внутренней поверхности трубопровода, была определена по гамма-излучению от распада ^{234}Th и ^{231}Th [25,26]. Общая масса урана в газе измерялась по рентгенофлюоресценции, возбуждаемой гамма-квантами 122 кэВ от источника ^{57}Co . Для получения прямого измерения обогащения градуировалось отношение интенсивностей гамма-излучения 186 кэВ от газообразного UF_6 к рентгеновской линии $K_{\alpha 1}$ -урана. Поправка на отложившийся уран определялась [24-26] по изменению поправки при пассивных измерениях гамма-излучения отложений урана при двух различных коллиматорах (см. рис. 7.9). В обоих случаях приборы были пригодны для обеспечения принятия решения «да/нет» при определении того, является ли измеренное обогащение меньшим или большим, чем 20 %, таким образом обеспечивая возможность определения наличия высокообогащенного урана для целей ядерной безопасности обогатительного завода.

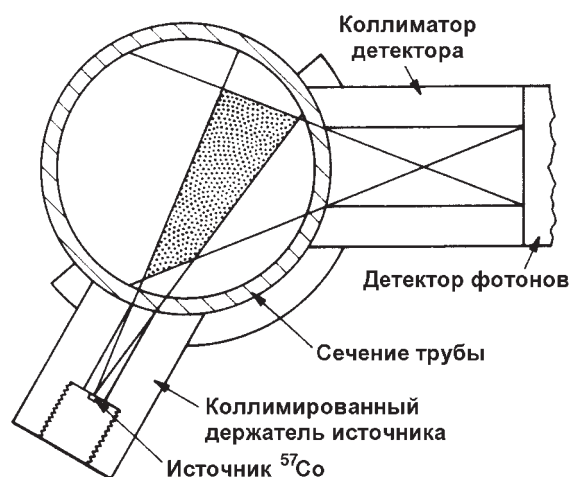


Рис. 7.9. Расположение детектор/коллиматор для измерения обогащения UF_6 низкого давления в трубопроводе. Устройство состоит из коллимированного держателя источника и коллиматора детектора, жестко закрепленных на трубопроводе. Частичное перекрытие двух полей обзора изолирует объем газа в середине трубы от отложений на стенках. Для возбуждения рентгенофлюоресценции в газе используется небольшой источник ^{57}Co [24]

7.6 ИЗМЕРЕНИЯ ОБОГАЩЕНИЯ ПО НЕЙТРОННОМУ ИЗЛУЧЕНИЮ

Другой пассивной методикой проверки обогащения UF_6 является регистрация нейтронов, испускаемых образцом в результате реакции $^{19}F(\alpha, n)$ [27]. Преобладающим альфа-излучателем в обогащенном уране и, следовательно, косвенно — основным источником нейтронов в UF_6 является ^{234}U . Кроме того, поскольку

ку обогащение по ^{234}U происходит совместно с обогащением по ^{235}U , пассивный подсчет общего числа нейтронов дает возможность грубого измерения обогащения ^{235}U . Отношение $^{235}\text{U}/^{234}\text{U}$ может изменяться более чем в четыре раза в диапазоне от обедненного до высокообогащенного урана для газодиффузионного процесса обогащения. Но для низкообогащенного урана (<5%) оно более близко к постоянному и проверочные измерения с ограниченной точностью возможны без использования характеристик ^{234}U [6, 9, 28]. Дальнейшее обсуждение этой методики приведено в главе 15.

7.7 ПОПРАВКИ НА ОСЛАБЛЕНИЕ В СТЕНКАХ КОНТЕЙНЕРА

Типовое соотношение между обогащением и данными измерения (уравнение (7.8)) включает выражение $\exp(\mu_c \rho_c t_c)$, которое учитывает ослабление измеряемого излучения в стенках контейнера образца. Ослабление может быть учтено при градуировке, если стандартный и измеряемый образцы имеют одинаковый тип контейнера. В некоторых случаях такое упрощение невозможно и поправка на ослабление в стенках контейнера должна применяться при каждом измерении. В этом разделе рассматриваются методы определения поправки для измерения обогащения в образце бесконечной толщины при постоянной матрице образца. Если коэффициент пропускания одной стенки контейнера исследуемого образца T_x определяется как

$$T_x = \exp[-(\mu_c \rho_c t_c)_x], \quad (7.17)$$

а T_s — определенный по аналогичной формуле коэффициент пропускания при градуировочном измерении, то искомое обогащение равно

$$E = KR(E_A)T_s / T_x, \quad (7.18)$$

где K — градуировочная постоянная;

$R(E_A)$ — чистая скорость счета гамма-пика исследуемого образца при анализируемой энергии ($E_A = 186$ кэВ), измеренная через стенку контейнера.

Далее представлены два метода определения этой поправки T_s/T_x на ослабление в стенке контейнера. Добавим, что контроль баллонов с UF_6 обсуждается для того, чтобы привести пример таких измерений, точность которых особенно критична к этой поправке.

7.7.1 Прямое измерение толщины стенки

Если состав контейнера и толщина стенки в точке измерения известны как для стандартного, так и для исследуемого образцов, то T_s/T_x может быть прямо рассчитано из экспоненциального выражения

$$T_s / T_x = \exp[(\mu_c \rho_c t_c)_s - (\mu_c \rho_c t_c)_x], \quad (7.19)$$

где ρ_c — плотность материала контейнера;

μ_c — оценено для анализируемой энергии.

Толщина стенки контейнера t_c может быть измерена непосредственно с помощью ультразвукового толщиномера (см. рис. 7.10). Ультразвуковой импульс посылается датчиком в материал контейнера и распространяется в нем, пока не до-

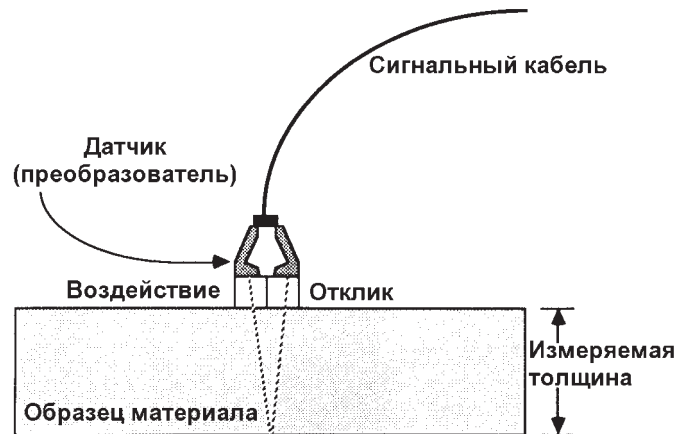


Рис. 7.10. Расположение датчика при ультразвуковом измерении толщины. Датчик должен иметь акустический контакт с внешней поверхностью материала для проникновения ультразвукового импульса внутрь материала без особого ослабления. Контакт достигается с помощью жидкого состава (обычно поставляемого с толщиномером), наносимого между торцом датчика и поверхностью материала

стигнет материала, существенно отличающегося по физическим характеристикам от материала контейнера, и тогда звук отражается обратно в датчик. Электронная часть прибора позволяет точно измерить время, необходимое ультразвуковому импульсу на прохождение туда и обратно в материале контейнера, и, таким образом, определить толщину материала. Такие толщиномеры выпускаются промышленностью и результаты обычно могут быть получены с погрешностью до $\pm 0,1$ мм. Недавние измерения [29] калиброванного стального диска, имеющего толщину 13,500 мм, дали при многократных измерениях разброс $\pm 0,055$ мм, что соответствует относительному стандартному отклонению 0,4 %.

7.7.2 Методика измерения отношения собственных гамма-линий

Отношение коэффициентов пропускания T_s/T_x также может быть определено по отношению интенсивностей гамма-квантов различных энергий от одного изотопа в предположении, что материал образца имеет бесконечную толщину для измеряемого гамма-излучения (см. раздел 7.3.2). Обычно для разделения интересных пиков требуется гамма-спектрометр с высоким разрешением. Для введения поправок в измерение обогащения по ^{235}U имеется несколько интенсивных резонансных гамма-линий вблизи пика 186 кэВ (см. табл. 7.1). Рассмотрим случай, когда дополнительно к площади основного анализируемого пика гамма-излучения измеряется интенсивность линий выше и ниже пика 186 кэВ (при энергиях E_H и E_L , соответственно). Если коэффициент пропускания определен уравнением (7.17), тогда имеем

$$\frac{T_s(E_A)}{T_x(E_A)} = \left[\frac{T_x(E_H)/T_s(E_H)}{T_x(E_L)/T_s(E_L)} \right]^{\frac{\mu_A}{\mu_L - \mu_H}}, \quad (7.20)$$

где индексы при μ соответствуют энергиям, при которых оценены μ . Для упрощения расчета коэффициентов пропускания при E_H и E_L преобразуем определение коэффициента пропускания с точки зрения измерений к виду

$$T = R / R_0, \quad (7.21)$$

где R – скорость счета для измеряемого пика, ослабленная в стенке контейнера; R_0 – скорость счета для измеряемого пика от образца с бесконечно тонким контейнером (т.е., $t_c \rightarrow 0$).

На практике R_0 не может быть измерена, но поскольку уравнение (7.20) содержит *отношения* коэффициентов пропускания, мы можем выразить эти отношения через отношения *площадей измеренных пиков*:

$$\frac{T_s(E_A)}{T_x(E_A)} = \left[\frac{R_x(E_H) / R_s(E_H)}{R_x(E_L) / R_s(E_L)} \right]^{\frac{\mu_A}{\mu_L - \mu_H}}, \quad (7.22)$$

где $R(E_{H,L})$ – площадь пика при энергии $E_{H,L}$.

Относительная погрешность отношения коэффициентов пропускания T_s/T_x отличается степенным показателем $\mu_A/(\mu_L - \mu_H)$ от относительной погрешности отношения площадей измеренных пиков, находящегося в скобках в правой части уравнения (7.22). Поэтому выгодно сделать этот показатель как можно меньшим, что достигается выбором пиков, не слишком близких по энергии. В табл. 7.4 приведены значения степенных показателей для наиболее часто встречающихся материалов контейнеров и двух выбранных измеряемых пиков. Заметьте, что одним из выбранных пиков является общепринятый для анализа пик 186 кэВ.

Таблица 7.4 – Значения степенных показателей $\mu_A/(\mu_L - \mu_H)$ для типичных материалов контейнеров

E_H/E_L	Железо	Монель	Алюминий	Полиэтилен*
205 кэВ/144 кэВ	2	2,17	8,13	8,88
186 кэВ/144 кэВ	3,20	2,78	11,09	11,83

* Полиэтилен низкой плотности, используемый в контейнерах.

Хотя методика отношения собственных гамма-линий является обычной для определения поправки на ослабление в стенках контейнеров, публикации по ее применению при измерении обогащения отсутствуют. Главная трудность в применении методики заключается в большом времени, необходимом для получения приемлемой статистической точности в областях вспомогательных пиков гамма-излучения.

7.7.3 Измерения баллонов с UF_6

Одним из наиболее обычных типов контейнеров при измерении обогащения является большой баллон, используемый для перевозки и хранения UF_6 в жидкой или твердой форме. Эти баллоны разнообразны по размерам и толщине стенок. В табл. 7.5 приведены некоторые основные параметры для наиболее распространенных типов баллонов [30].

Таблица 7.5 – Физические характеристики некоторых баллонов для перевозки и хранения UF₆ [30]

Характеристика	Тип баллона			
	5А	8А	30В	48Х
Номинальный диаметр, мм	127	203,2	762	1219,2
Номинальная длина, мм	914,4	1422,4	2057,4	3073,4
Конструкционный материал	Монель	Монель	Сталь	Сталь
Толщина стенки, мм	6,4	4,8	12,7	15,9

Большая толщина стенок баллона из материала с высокой плотностью означает, что небольшое изменение толщины стенок может вызвать значительное изменение скорости счета от гамма-излучения. Соотношение между относительным изменением результата определения обогащения и относительным отклонением толщины стенки получается путем дифференцирования уравнения (7.8):

$$dE/E = \mu_c \rho_c (dt_c/t_c) = 1,12(dt_c/t_c), \quad (7.23)$$

где последняя часть формулы получена для стали ($\mu_c = 0,144 \text{ см}^2/\text{г}$ при 186 кэВ и $\rho_c = 7,8 \text{ г}/\text{см}^3$). Таким образом, отклонение толщины стенки баллона на 10 % (только 1,27 мм для баллона типа 30В) вызовет смещение соответствующего результата измерения обогащения на 12 %. Использование измерения толщины стенки толщиномером уменьшает погрешность измерения до нескольких десятых долей процента, практически выводя толщину стенки из рассмотрения в качестве источника смещения результата измерения. Приборы для измерения обогащения UF₆ в баллонах могут градуироваться с использованием одного или более баллонов в качестве стандартных, которые затем могут быть направлены на анализ. С другой стороны, могут быть использованы стандартные образцы U₃O₈ или UF₄ известного обогащения с соответствующей поправкой на разницу в матрицах (т.е., на коэффициент F/F_s по табл. 7.3).

Ранее при оценке измерений обогащения в баллонах типов 30В и 5А с помощью сцинтилляционных детекторов NaI(Tl) [6] были получены результаты с относительным стандартным отклонением 5 % для баллонов типа 30В и <1 % – для баллонов типа 5А. Время измерения составляло несколько минут, а измерение толщины стенок занимало всего несколько секунд. Хороший акустический контакт между датчиком толщиномера и поверхностью баллона был достигнут полировкой пятна в области измерения гамма-детектором; неопределенность измерения толщины оценивалась в 0,4 %. Более современные оценки измерений обогащения баллонов типов 48 и 30 с UF₆ [28] показали аналогичные результаты даже с использованием гамма-детекторов высокого разрешения.

7.8 РАСПРОСТРАНЕНИЕ ПРИЕМОВ ИЗМЕРЕНИЯ ОБОГАЩЕНИЯ УРАНА НА ДРУГИЕ ОБЛАСТИ ПРИМЕНЕНИЯ

7.8.1 Измерение концентрации

В определенной области содержания урана приемы измерения обогащения становятся методами измерения *концентрации* урана [5]. Оба случая подчиняются одним и тем же математическим уравнениям, например (7.8); зависимость результатов от концентрации урана и матрицы содержится в коэффициенте F в уравнении (7.9). Для матриц с эффективным $Z \leq 30$ отношение μ_m/μ_U менее 0,1. Тогда для $\rho_m/\rho_U \leq 1$ величина коэффициента поправки F очень близка к единице, а скорость счета почти прямо пропорциональна обогащению:

$$R = KEF = KE \quad (7.24)$$

Поэтому область, в которой $\mu_m\rho_m/\mu_U\rho_U \leq 0,1$, называют "областью обогащения".

На другом конце спектра измерений располагаются случаи, для которых концентрация урана очень мала по сравнению с вкладом матрицы. Когда $\mu_m\rho_m/\mu_U\rho_U \geq 10$, коэффициентом F можно пренебречь. Тогда, если известны величины обогащения и μ , уравнение (7.24) преобразуется к виду

$$R = KEF = K'E(\rho_U / \rho_m) \quad (7.25)$$

с погрешностью $\leq 10\%$. K' — новая градуировочная постоянная. Область, для которой $\mu_m\rho_m/\mu_U\rho_U \geq 10$, тогда может быть названа областью "измерения концентрации". В ней также должен удовлетворяться критерий "бесконечной" толщины. Примером образцов, которые полностью принадлежат области "измерения концентрации", являются контейнеры с загрязненными ураном материалами, например, растворы с разбавленным ураном или урановые отложения в баках с кольцами Рашига [5].

7.8.2 Соотношение компонентов в смешанном оксидном топливе

Принцип измерения обогащения также может быть использован для качественной оценки различных реакторных топливных смесей, например, PuO_2 , UO_2 , $U-C$ и $Th-C$, или, в общем случае, для анализа любых делящихся материалов, имеющих подходящее низкоэнергетическое гамма-излучение, так чтобы образец удовлетворял критерию "бесконечной" толщины [4, 31]. В случае смеси нескольких компонентов, скорость счета характеристического гамма-излучения от изотопа с обогащением E дается выражением

$$R = ESA\epsilon / (\mu_1 F), \quad (7.26)$$

где F — теперь более общий вид уравнения (7.9):

$$F = 1 + [1 / (\mu_1 \rho_1)] \sum_{i=2}^n \mu_i \rho_i \quad (7.27)$$

Текущий индекс i обозначает соответствующий компонент элемента в смеси материалов в образце, а индекс 1 обозначает элемент, чей изотоп испускает исследуемое

дуемое "реперное" гамма-излучение. Для случая смеси $\text{PuO}_2 + \text{UO}_2$ и регистрации излучения плутония ("реперное" излучение 129 кэВ удовлетворяет критерию "бесконечной" толщины) предыдущее выражение преобразуется к виду:

$$R = \frac{E S A \varepsilon}{\mu_{\text{Pu}} K (1 + r)}, \quad (7.28)$$

где параметр смеси $r = \rho_{\text{U}}/\rho_{\text{Pu}}$. Коэффициент K отражает вклад более высокого порядка от матрицы в смеси специальных ядерных материалов и имеет значение около единицы. Сомножитель $1/(1 + r)$ отражает существенное изменение ослабления гамма-излучения плутония при добавлении урана. Так как K крайне чувствителен к изменению соотношения смеси [4], результат измерения обогащения для бесконечного образца прямо пропорционален $E/(1 + r)$; т.е. очень чувствителен к изменению как изотопного обогащения, так и соотношения смеси. Дополнительное измерение одной из линий гамма-излучения урана в этом примере, в принципе, позволит контролировать независимо как обогащение плутония, так и соотношение элементов в смеси, при условии, что изотопный состав урана известен.

ЛИТЕРАТУРА

1. M.E. Anderson and J.F. Lemming, "Selected Measurement Data for Plutonium and Uranium," Mound Laboratory report MLM-3009 (1982).
2. T.R. Canada, *An Introduction to Non-Destructive Assay Instrumentation, A Training Manual for the International Atomic Energy Agency Inspectorate*, (International Atomic Energy Agency, Vienna, 1984).
3. J.T. Russell, "Method and Apparatus for Nondestructive Determination of ^{235}U in Uranium," US Patent No. 3 389 254, June 1968.
4. T.D. Reilly, R.B. Walton, and J.L. Parker, "The Enrichment Meter — A Simple Method for Measuring Isotopic Enrichment," in "Nuclear Safeguards Research and Development Program Status Report, September-December, 1970," G.Robert Keepin, Comp., Los Alamos Scientific Laboratory report LA-4605-MS (1970), p.19.
5. J.L. Parker and T.D. Reilly, "The Enrichment Meter as a Concentration Meter," in "Nuclear Analysis Research and Development, Program Status Report, September-December 1972," G.Robert Keepin, Comp., Los Alamos Scientific Laboratory report LA-5197-PR (1972), p.11.
6. R.B. Walton, T.D. Reilly, J.L. Parker, J.H. Menzel, E.D. Marshall, and L.W. Fields, "Measurement of UF_6 Cylinders with Portable Instruments," *Nuclear Technology* 21, 133 (1974).
7. L.A. Kull and R.O. Ginaven, "Guidelines for Gamma-Ray Spectroscopy Measurements of ^{235}U Enrichment," Brookhaven National Laboratory report BNL-50414 (1974).
8. P. Matussek, "Accurate Determination of the ^{235}U Isotope Abundance by Gamma Spectrometry: A User's Manual for the Certified Reference Material EC-NRM-171/NBS-SRM-969," Institut fur Kernphysik report KfK 3752, Kernforschungszentrum, Karlsruhe, Federal Republic of Germany (1985).

9. T.D. Reilly, E.R. Martin, J.L. Parker, L.G. Speir, and R.B. Walton "A Continuous In-Line Monitor for UF₆ Enrichment," *Nuclear Technology* 23, 318 (1974).
10. J.K. Halbig, S.F. Klosterbuer, and R.A. Cameron, "Application of a Portable Multichannel Analyzer in Nuclear Safeguards," Proc. of the IEEE 1985 Nuclear Science Symposium, San Francisco, California, October 23-25, 1985. Also available as Los Alamos National Laboratory document LA-UR-85-3735 (1985).
11. D.R. Terry, "Development of IAEA Safeguards Measurements for Enrichment Plants," *Transaction of the American Nuclear Society* 50,176 (1985).
12. R.J.S. Harry, J.K. Aaldijk, and J.P. Braak, "Gamma-Spectroscopic Determination of Isotopic Composition Without Use of Standards," *Proc. IAEA Symposium, "Safeguarding Nuclear Materials,"* Vienna, October 20-24, 1975, Vol. II (1975), p.235.
13. T.N. Dragnev and B.P. Damyanov, "Methods for Precise, Absolute Gamma-Spectrometric Measurements of Uranium and Plutonium Isotopic Ratios," *Proc. IAEA Symposium on Nuclear Materials Safeguards,* Vienna, Austria, October 2-6, 1978, IAEA-SM-231, Vol. I (1978), p.739.
14. T.N. Dragnev, B.P. Damyanov, and K.S. Karamanova, "Non-Destructive Measurements of Uranium and Thorium Concentrations and Quantities," *Proc. IAEA Symposium on Nuclear Materials Safeguards,* Vienna, Austria, October 2-6, 1978, IAEA-SM-231, Vol. II (1978), p.207.
15. T.N. Dragnev, B.P. Damyanov, and G.G. Grozev, "Simplified Procedures and Programs for Determining Uranium and Plutonium Isotopic Ratios," *Proc. IAEA Symposium on Nuclear Materials Safeguards,* Vienna, Austria, November 8-12, 1982, IAEA-SM-260, Vol. II (1982), p.258.
16. R. Hagenauer, "Nondestructive Determination of Uranium Enrichment Using Low-Energy X and Gamma Rays," *Nuclear Materials Management* XI, 216 (1982).
17. J.W. Tape, M.P. Baker, R. Strittmatter, M. Jain, and M.L. Evans, "Selected Non-destructive Assay Instruments for an International Safeguards System at Uranium Enrichment Plants," *Nuclear Materials Management* VIII, 719 (1979).
18. R.B. Strittmatter, J.N. Leavitt, and R.W. Slice, "Conceptual Design for the Field Test and Evaluation of the Gas-Phase UF₆ Enrichment Meter," Los Alamos Scientific Laboratory report LA-8657-MS (1980).
19. R.B. Strittmatter, "A Gas-Phase UF₆ Enrichment Monitor," *Nuclear Technology* 59, 355 (1982).
20. R.B. Strittmatter, L.A. Stovall, and J.K. Sprinkle, Jr., "Development of an Enrichment Monitor for the Portsmouth GCEP," *Proc. Conference on "Safeguards Technology: The Process-Safeguards Interface,"* Hilton Head Island, SC, November 28-December 3, 1983, (Conf. 831106, 1984), p.63.
21. R.B. Strittmatter, R.R. Pickard, J.K. Sprinkle, Jr., and J.R. Tarrant, "Data Evaluation of the Gas-Phase UF₆ Enrichment Meter," *Proc. ESARDA/INMM Joint Specialist Meeting on NDA Statistical Problems,* Ispra, Italy, September 12-14, 1984, p.243.
22. D.A. Close, J.C. Pratt, H.F. Atwater, J.J. Malanify, K.V. Nixon, and L.G. Speir, "The Measurement of Uranium Enrichment for Gaseous Uranium at Low Pressu-

- re," *Proc. of the 7th Annual Symposium on Safeguards and Nuclear Material Management, ESARDA*, Liege, Belgium, May 21-23, 1985, p.127.
23. D.A. Close, J.C. Pratt, J.J. Malanify, and H.F. Atwater, "X-Ray Fluorescent Determination of Uranium in the Gaseous Phase," *Nuclear Instruments and Methods A* 234, 556, (1985).
 24. D.A. Close, J.C. Pratt, and H.F. Atwater, "Development of an Enrichment Measurement Technique and its Application to Enrichment Verification of Gaseous UF₆," *Nuclear Instruments and Methods A* 240, 398, (1985).
 25. T.W. Packer and E.W. Lees, "Measurement of the Enrichment of Uranium in the Pipework of a Gas Centrifuge Plant," *Proc. of the 6th Annual Symposium on Safeguards and Nuclear Material Management, ESARDA*, Venice, Italy, May 14-18, 1984, p.243.
 26. T.W. Packer and E.W. Lees, "Measurement of the Enrichment of UF₆ Gas in the Pipework of a Gas Centrifuge Plant," *Proc. of the 7th Annual Symposium on Safeguards and Nuclear Material Management, ESARDA*, Liege, Belgium, May 21-23, 1985, p.299.
 27. T.D. Reilly, J.L. Parker, A.L. Evans, and R.B. Walton, "Uranium Enrichment Measurement on UF₆ Product Cylinders," in "Nuclear Safeguards Research and Development Program Status Report, May-August 1971," G.Robert Keepin, Comp., Los Alamos Scientific Laboratory report LA-4794-MS (1971), p.16.
 28. J.L. Weiman, "Practical Uncertainty Limits in Gamma-Ray Enrichment Measurements on Low-Enriched Uranium Hexafluoride," *Proc. ESARDA/INMM Joint Specialist Meeting on NDA Statistical Problems*, Ispra, Italy, September 12-14, 1984, p.101.
 29. L.R. Stieff, R.B. Walton, T.D. Reilly, L.W. Fields, R.L. Walker, W.T. Mullins, and J.I. Thoms, "Neutron Measurements of ²³⁴U Isotopic Abundances in UF₆ Samples," *Nuclear Materials Management IV*, 179 (1975).
 30. "Uranium Hexafluoride: Handling Procedures and Container Criteria," Oak Ridge Operations Office report ORO-651, Revision 4 (1977).
 31. G.W. Nelson, S.-T. Hsue, T.E. Sampson, and R.G. Gutmacher, "Measurement of Uranium/Plutonium Blendig Ratio," in "Safeguards and Security Progress Report, January-December 1984," Darryl B.Smith, Comp., Los Alamos National Laboratory report LA-10529-PR (1986), p.19.

Глава 8

Гамма-спектрометрия изотопного состава плутония

Т. Е. Сэмсон
(Переводчик И. Н. Сазонов)

8.1 ВВЕДЕНИЕ

Для интерпретации результатов измерений нейтронных совпадений или калориметрии необходимо точное измерение изотопного состава плутония. Были разработаны несколько методов определения изотопного состава плутония с помощью гамма-спектрометрии; некоторые ранние достижения описаны в работах [1-5]. Стандартный метод анализа изотопного состава плутония с использованием гамма-спектрометрии описан в работе Американского общества испытаний и материалов ASTM (American Society for Testing and Materials) [6]. Для различных типов образцов были разработаны различные методы.

В этой главе приведены характеристики спектров плутония, которые оказывают влияние на измерения изотопного состава, описываются используемые спектральные области и представлены основы спектрального анализа, важные для изотопных измерений. Глава включает описание типичных устройств для сбора данных, подробное изложение методов анализа и описание нескольких применяемых систем с примерами их точностных характеристик.

8.2 ОСНОВНЫЕ СВЕДЕНИЯ

8.2.1. Характеристики распада изотопов плутония

Большинство образцов плутония содержат изотопы ^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{241}Pu и ^{242}Pu . Среди продуктов распада ^{241}Pu всегда присутствуют изотопы ^{241}Am и ^{237}U . В табл. 8.1 приведены некоторые характеристики распада этих важнейших изотопов.

Таблица 8.1 – Характеристики распада изотопов, используемых при измерениях изотопного состава плутония

Изотоп	Период полураспада, лет	Активность, распадов/с·г	Удельная мощность, мВт/г изотопа
^{238}Pu	$87,74 \pm 0,04$	$6,3330 \times 10^{11}$	$567,57 \pm 0,026$
^{239}Pu	24119 ± 26	$2,2942 \times 10^9$	$1,9288 \pm 0,0003$
^{240}Pu	6564 ± 11	$8,3971 \times 10^9$	$7,0824 \pm 0,0020$
^{241}Pu	$14,348 \pm 0,022$	$3,8244 \times 10^{12}$	$3,412 \pm 0,002$
^{242}Pu	376300 ± 900	$1,4522 \times 10^8$	$0,1159 \pm 0,0003$
^{241}Am	$433,6 \pm 1,4$	$1,2655 \times 10^{11}$	$114,20 \pm 0,50$
^{237}U	(6,75 сут)	$9,4080 \times 10^7$ *	—

* Активность ^{237}U рассчитана в предположении равновесия ^{241}Pu - ^{237}U (см. рис. 8.1). Вероятность альфа-распада ^{241}Pu предполагается равной $2,46 \times 10^{-5}$.

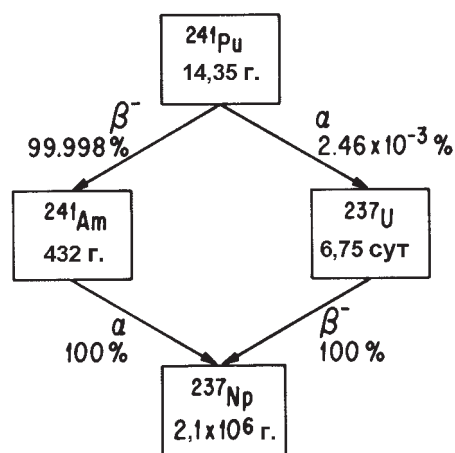


Рис. 8.1. Схема распада ^{241}Pu и его дочерних продуктов

8.2.2 Характеристики распада изотопа ^{241}Pu

Схема распада ^{241}Pu приведена на рис. 8.1. Из-за большого периода полураспада изотопа ^{241}Am концентрация его дочерних продуктов распада продолжает увеличиваться вплоть до 75 лет. Старые образцы плутония часто имеют очень высокое содержание ^{241}Am , особенно если начальная концентрация ^{241}Pu была очень высока.

Вследствие своего короткого времени полураспада дочерний изотоп ^{237}U быстро приходит в равновесие с материнским изотопом ^{241}Pu [7]. После приблизительно 47 дней (7 периодов полураспада), гамма-излучение ^{237}U может быть использовано в качестве меры содержания ^{241}Pu . Поскольку ^{237}U имеет несколько мощных гамма-линий, именно они особенно часто используются при измерениях изотопного состава плутония. В этой главе термины "равновесие ^{241}Pu - ^{237}U " или "возраст" относятся к образцам, в которых изотоп ^{237}U находится в установившемся (вековом) равновесии с изотопом ^{241}Pu . Образцы, в которых равновесие ^{241}Pu - ^{237}U не достигнуто, именуется "свежевыделенными". Для них изотоп ^{237}U не может быть использован в качестве меры содержания изотопа ^{241}Pu .

Изотопы ^{241}Am и ^{237}U распадаются до одного и того же изотопа ^{237}Np (см. рис. 8.1). При этом оба изотопа могут образовывать одни и те же возбужденные состояния ^{237}Np и испускать идентичные гамма-кванты. Таким образом, наиболее используемые пики гамма-излучения ^{237}U имеют вклад от ^{241}Am , величина которого зависит от конкретной гамма-линии и от времени, когда америций последний раз был выделен из образца. На рис. 8.2 показан относительный вклад основных гамма-линий изотопа ^{237}U . Для пиков ^{241}Pu - ^{237}U должна быть сделана поправка на вклад изотопа ^{241}Am .

8.2.3. Определение концентрации изотопа ^{242}Pu

Изотоп ^{242}Pu имеет всего несколько гамма-линий, которые по энергии и выходу подобны таким же линиям ^{240}Pu . Однако большой период полураспада ^{242}Pu и его низкое содержание в большинстве образцов плутония делают его определение с помощью гамма-измерений практически невозможным. Вместо этого используется эмпирическая изотопная корреляция [8] для расчета содержания ^{242}Pu по другим изотопным составляющим. Такой расчет концентрации ^{242}Pu (как правило, от 0,03 до 5 %), обычно дает приемлемые результаты для большинства образцов плутония, если не были перемешаны разные партии плутония и ^{241}Am не добавлялся и не извлекался.

8.2.4 Спектральная интерференция

Многие области спектра гамма-излучения могут содержать интерферирующие гамма-линии от других изотопов, присутствующих в образце. Например, образцы с очень высоким выгоранием часто содержат ^{243}Am и его дочерний изотоп ^{239}Np ; старые образцы могут содержать ^{237}Np и его дочерний изотоп ^{233}Pa ; образцы из регенерированного топлива могут содержать продукты деления. Здесь не могут быть перечислены все возможные случаи интерференции, однако знание истории образца (продолжительность облучения и выдержки, срок после переработки) позволяет предусмотреть возможные спектральные интерференции.

8.2.5 Практическое применение измерений изотопного состава плутония

Одной из основных целей измерений изотопного состава плутония является поддержка других методов неразрушающего анализа (НРА) для определения общего содержания плутония в образце. Двумя такими методами, которые используют результаты изотопного анализа плутония, являются калориметрия и регистрация нейтронных совпадений.

В калориметрии для расчета удельной тепловой мощности образца (Вт/г Pu) используются изотопная информация, полученная из измерений состава изотопов, и известная удельная тепловая мощность для каждого изотопа (см. главы 21 и 22).

Результат регистрации нейтронных совпадений является сложной функцией содержания всех изотопов плутония и ^{241}Am . Измерение изотопного состава необходимо для преобразования результата регистрации нейтронных совпадений в массу плутония (см. главу 16).

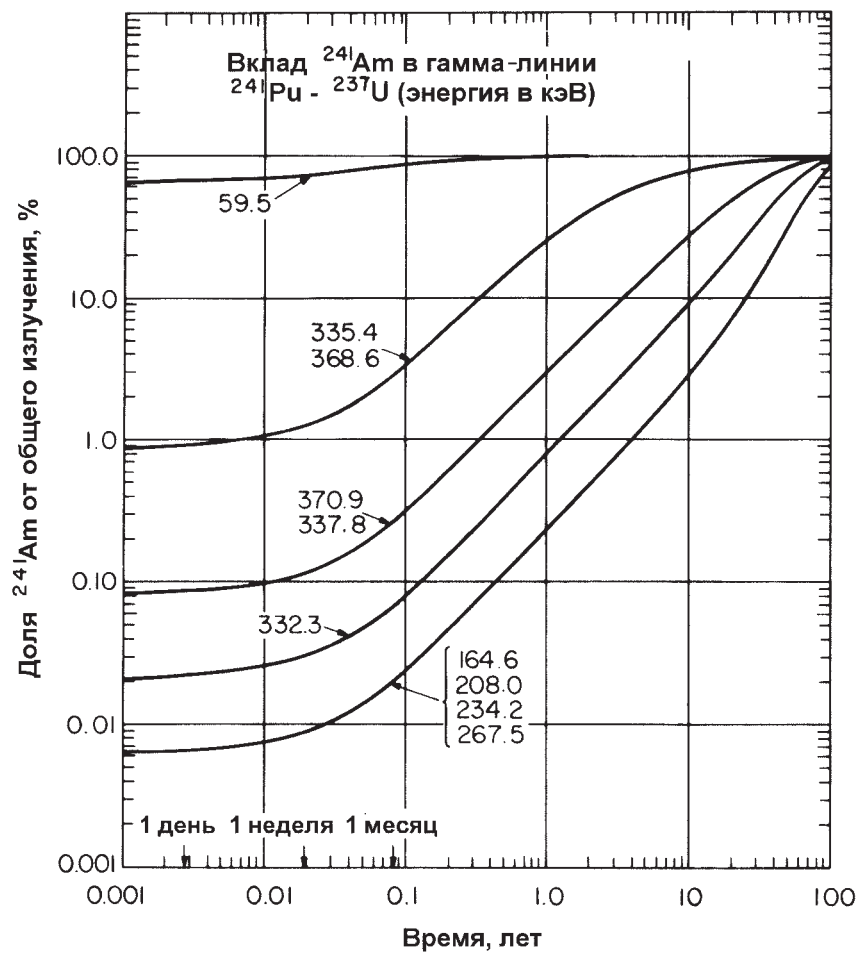


Рис. 8.2. Вклад америция-241 в пик гамма-излучения урана-237 как функция интервала времени после разделения. В момент времени $t = 0$ концентрация урана и америция – нулевая

8.3 СПЕКТРАЛЬНЫЕ ОБЛАСТИ, ИСПОЛЬЗУЕМЫЕ ДЛЯ ИЗОТОПНЫХ ИЗМЕРЕНИЙ

В этом разделе приведены особенности спектров, которые важны для измерения изотопного состава плутония. Описание соответствует методике, используемой в работах Ганнинка с сотрудниками [9] и Лемминга и Рэкеда [10], в которых спектр разбивается на несколько различных областей. Спектр гамма-излучения плутония сильно зависит от изотопного состава и концентрации ^{241}Am . Спектры двух образцов приведены на рис. 8.3 и 8.4. На рис. 8.3 представлен пример низкого выгорания и малого содержания ^{241}Am ; на рис. 8.4 — среднего выгорания и относительно высокого содержания ^{241}Am . Подобные примеры приведены для каждой спектральной области в качестве иллюстрации изменений, которые могут встретиться.

В табл. 8.2 приведен перечень большинства гамма-линий, используемых при изотопных измерениях плутония. Этот перечень показывает, что гамма-кванты низкой энергии намного интенсивнее, чем при больших энергиях. Однако во многих случаях низкоэнергетические гамма-кванты использовать невозможно.

8.3.1. Область энергии 40 кэВ

Область энергии 40 кэВ используется, главным образом, для анализа свежесделанных растворов, из которых были удалены ^{241}Am и ^{237}U . Если присутствует много ^{241}Am , его гамма-линия 60 кэВ подавляет все остальные пики в этой области. Обычно область 40 кэВ используется в период времени от 15 до 30 дней после отделения америция и урана. Типичный спектр от раствора регенерированного высоко выгоревшего топлива [11] показан на рис. 8.5; в табл. 8.3 приведены энергии пиков и их интенсивности. Область энергии гамма-излучения 40 кэВ — наиболее используемая для измерений ^{238}Pu , ^{239}Pu и ^{240}Pu , когда это технически возможно. Эта область не содержит измеряемых гамма-квантов ^{241}Pu ; обычно концентрация ^{241}Pu измеряется по его гамма-линии 148,6 кэВ. Для малых количеств ^{241}Pu и ^{237}U их пики интерферируют с пиком 43,5 кэВ ^{238}Pu , пиком 45,2 кэВ ^{240}Pu и пиком 51,6 кэВ ^{239}Pu .

Несколько экспериментаторов использовали эту область для измерения плутония в растворах: Ганнинк [12] и Руссо [11] измеряли растворы, сразу после разделения на радиохимическом заводе; Умегава [13] и Баберняк [14] использовали такие измерения для образцов, приготовленных в аналитической лаборатории. Лай [15] измерял субмиллиграммовые твердые образцы с незначительным содержанием ^{241}Am . Ганнинк использовал методику абсолютного счета и градуировку на известных стандартных растворах; Умегава — абсолютный счет с помощью предварительно отградуированного детектора. Баберняк проводил градуировку с помощью образцов известного изотопного состава. Руссо и Лай измеряли изотопные отношения без стандартных образцов, как это описано в разделе 8.4.

Таблица 8.2 – Гамма-линии различных энергетических областей, используемые при измерениях изотопного состава плутония

Область энергии, кэВ	²³⁸ Pu		²³⁹ Pu		²⁴⁰ Pu		²⁴¹ Pu		²⁴¹ Am
	Энергия, кэВ	Интенсивность, квант/с·г	Энергия, кэВ	Интенсивность, квант/с·г	Энергия, кэВ	Интенсивность, квант/с·г	Энергия, кэВ	Интенсивность, квант/с·г	
40-60	43	2,49×10 ⁸	51,63	6,19×10 ⁵	4	3,80×10 ⁶	-	59,54	4,54×10 ¹⁰
90-105	99,86	4,59×10 ⁷	98,78	2,80×10 ⁴	104,24	5,86×10 ⁵	103,68	98,95	2,57×10 ⁷
120-450	152,68	6,05×10 ⁶	129,29	1,44×10 ⁵	160,28	3,38×10 ⁴	148,57	125,29	2,47×10 ⁷
			203,54	1,28×10 ⁴			164,58*	335,40	6,28×10 ⁵
			345,01	1,28×10 ⁴			208,00*		
			375,04	3,60×10 ⁴			332,35*		
			413,71	3,42×10 ⁴			370,93*		
450-800	766,41	1,39×10 ⁵	645,97	3,42×10 ²	642,48	1,05×10 ³	-	662,42	4,61×10 ⁵
			717,72	6,29×10 ¹				721,99	2,48×10 ⁵

* Дочерний ²³⁷U от распада ²⁴¹Pu при равновесии ²⁴¹Pu-²³⁷U.

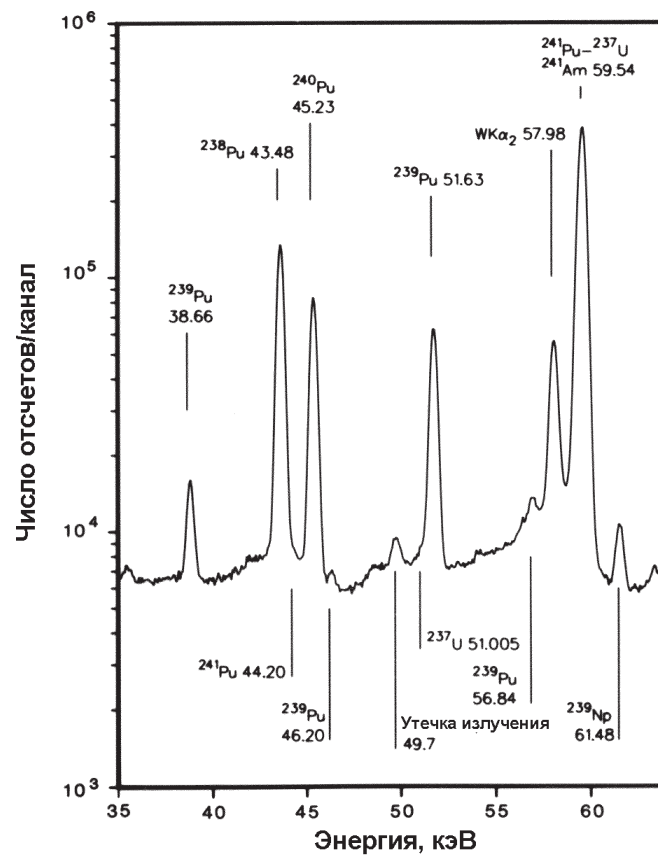


Рис. 8.5. Спектр гамма-излучения в области энергии 40 кэВ от раствора свежевыделенного плутония в азотной кислоте, концентрация 185 г/л. Изотопный состав (вес. %): ^{238}Pu — 0,649 %; ^{239}Pu — 67,01 %; ^{240}Pu — 21,80 %; ^{241}Pu — 8,11 %; ^{242}Pu — 2,44 % [11]. Рентгеновская $\text{K}\alpha_2$ -линия вольфрама — от защиты, окружающей детектор

Таблица 8.3 – Энергии пиков в области 40 кэВ и их интенсивности [9]

Изотоп	Энергия, кэВ	Выход, квант/распад	Погрешность, %	Интенсивность, квант/с·г
²³⁹ Pu	38,664	1,050×10 ⁻⁴	1,00	2,4089×10 ⁵
²³⁹ Pu	40,410	1,620×10 ⁻⁶	10,00	3,7165×10 ³
²³⁹ Pu	42,060	1,650×10 ⁻⁶	3,00	3,7854×10 ³
²³⁷ U	43,430	5,904×10 ⁻⁹	7,00	2,2579×10 ⁴ *
²³⁸ Pu	43,477	3,930×10 ⁻⁴	0,30	2,4889×10 ⁸
²⁴¹ Pu	44,200	4,180×10 ⁻⁸		1,5986×10 ⁵
²⁴¹ Pu	44,860	8,360×10 ⁻⁸		3,1972×10 ⁴
²⁴⁰ Pu	45,232	4,530×10 ⁻⁴	0,20	3,8039×10 ⁶
²³⁹ Pu	46,210	7,370×10 ⁻⁶	10,00	1,6908×10 ⁴
²³⁹ Pu	46,690	5,800×10 ⁻⁶	6,00	1,3306×10 ³
²³⁷ U	51,005	8,364×10 ⁻⁸	2,00	3,1987×10 ⁵ *
²³⁹ Pu	51,629	2,700×10 ⁻⁴	0,20	6,1942×10 ⁵
²³⁹ Pu	54,040	2,000×10 ⁻⁶	1,40	4,5883×10 ³
²⁴¹ Pu	56,320	2,500×10 ⁻⁸		9,5610×10 ⁴
²³⁹ Pu	56,760	9,750×10 ⁻⁹		3,7288×10 ⁴
²³⁹ Pu	56,838	1,130×10 ⁻⁵	1,00	2,5924×10 ⁴
²³⁷ U	59,536	8,487×10 ⁻⁶	0,20	3,2458×10 ⁷ *
²⁴¹ Am	59,536	3,590×10 ⁻¹		4,5432×10 ¹⁰
²³⁷ U	64,832	3,198×10 ⁻⁷	0,50	1,2230×10 ⁶ *

* Интенсивность для ²³⁷U рассчитана в предположении равновесия ²⁴¹Pu-²³⁷U. Выход для ²³⁷U включает вероятность 2,46×10⁻⁵ альфа-распада ²⁴¹Pu в ²³⁷U.

8.3.2. Область энергии 100 кэВ

Область энергии 100 кэВ является наиболее сложной в гамма-спектре плутония. В табл. 8.4 приводятся 14 линий гамма- и рентгеновского излучения в этой области энергии. Рентгеновское излучение урана возникает при распаде плутония и может быть использовано для измерения изотопов плутония. Рентгеновское излучение нептуния возникает при распаде ²⁴¹Am и ²³⁷U, а рентгеновское излучение плутония появляется в больших образцах или образцах более высокой концентрации в результате рентгеновской флюоресценции, возбужденной гамма-квантами или альфа-частицами. Область энергии 100 кэВ является единственной областью, в которой присутствует гамма-излучение всех изотопов.

На рис. 8.6 показана мощная интерферирующая природа области энергии 100 кэВ. С ее помощью может быть определено общее распределение изотопов для образцов растворов топлива низкого выгорания [4]. Спектр от такого образца, измеренный с помощью детектора из особо чистого германия (ОЧГ), показан в нижней части рис. 8.6. Сложность этой области требует проведения анализа с использованием методов подгонки пиков или функции соответствия [4, 16]. Низко выгоревший PuO_2 также анализировался с использованием методов функции соответствия. Растворы глубоко выгоревших образцов были проанализированы в этой области с использованием методов функции отклика [12], но такой анализ затруднен. Повышенная активность альфа- и гамма-излучения глубоко выгоревших материалов или образцов растворов высокой концентрации вызывает рентгеновскую флуоресценцию плутония с энергиями 99,53 и 103,75 кэВ. Это рентгеновское излучение интерферирует с пиками гамма-излучения 99,86 кэВ от ^{238}Pu и 104,24 кэВ от ^{240}Pu . Характерная форма линии рентгеновского излучения отличается от линии гамма-излучения; эта разница должна учитываться при анализе этой области методами функции отклика.

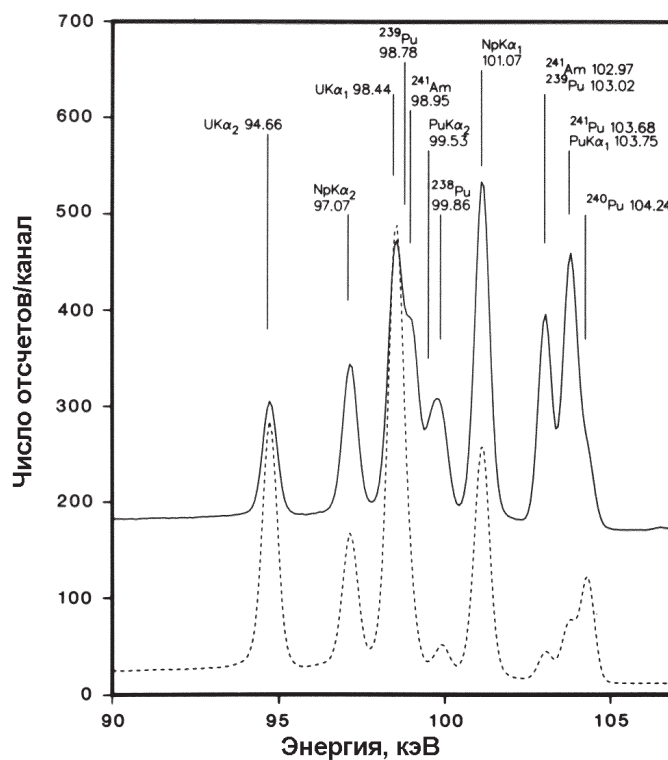


Рис. 8.6. Спектр гамма-излучения в области энергии 100 кэВ, измеренный с помощью детектора ОЧГ с разрешением 490 эВ при энергии 122 кэВ. Сплошная линия: 530 г плутония в виде PuO_2 . Изотопный состав (вес. %): ^{238}Pu — 0,302 %, ^{239}Pu — 82,49 %; ^{240}Pu — 13,75 %; ^{241}Pu — 2,69 %; ^{242}Pu — 0,76 %; ^{241}Am — 11 800 мкг/г Pu. Пунктирная линия: 10 мл раствора плутония с концентрацией 20 г/л в 1М HNO_3 . Изотопный состав (вес. %): ^{238}Pu — 0,027 %, ^{239}Pu — 91,65 %; ^{240}Pu — 7,68 %; ^{241}Pu — 0,532 %; ^{242}Pu — 0,12 %; ^{241}Am — 315 мкг/г Pu

Таблица 8.4 – Энергии пиков в области 100 кэВ и их интенсивности [9]

Изотоп	Энергия, кэВ	Выход, квант/распад	Погрешность, %	Интенсивность, квант/с·г	Рентгеновское излучение
²³⁸ Pu	94,658	1,050×10 ⁻⁶	1,40	6,6497×10 ⁵	U K _{α2}
²³⁹ Pu	94,658	4,220×10 ⁻⁵	0,25	9,6813×10 ⁴	U K _{α2}
²⁴⁰ Pu	94,658	6,360×10 ⁻⁷	5,00	5,3406×10 ³	U K _{α2}
²⁴¹ Pu	94,658	3,030×10 ⁻⁶	0,50	1,1588×10 ⁷	U K _{α2}
²³⁹ Pu	96,130	2,230×10 ⁻⁷	20,00	5,1160×10 ²	
²³⁷ U	97,071	3,887×10 ⁻⁶	0,40	1,4865×10 ⁷	Np K _{α2} *
²⁴¹ Am	97,072	1,180×10 ⁻⁵	2,00	1,4933×10 ⁶	Np K _{α2}
²³⁸ Pu	98,441	1,690×10 ⁻⁶	1,00	1,0703×10 ⁶	U K _{α1}
²³⁹ Pu	98,441	6,760×10 ⁻⁵	0,30	1,5508×10 ⁵	U K _{α1}
²⁴⁰ Pu	98,441	1,020×10 ⁻⁶	5,00	8,5651×10 ³	U K _{α1}
²⁴¹ Pu	98,441	4,850×10 ⁻⁶	0,50	1,8548×10 ⁷	U K _{α1}
²³⁹ Pu	98,780	1,220×10 ⁻⁵	3,00	2,7989×10 ⁴	
²⁴¹ Am	98,951	2,030×10 ⁻⁴	0,50	2,5690×10 ⁷	
Pu **	99,530				Pu K _{α2}
²³⁸ Pu	99,864	7,240×10 ⁻⁵	0,20	4,5851×10 ⁷	
²³⁷ U	101,066	6,199×10 ⁻⁶	0,30	2,3708×10 ⁷	Np K _{α1} *
²⁴¹ Am	101,066	1,900×10 ⁻⁵	1,40	2,4045×10 ⁶	Np K _{α1}
²⁴¹ Am	102,966	1,950×10 ⁻⁴	0,50	2,4677×10 ⁷	
²³⁹ Pu	103,020	2,170×10 ⁻⁶	1,60	4,9783×10 ³	
²⁴¹ Pu	103,680	1,010×10 ⁻⁶	0,50	3,8627×10 ⁶	
Pu **	103,748				Pu K _{α1}
²⁴⁰ Pu	104,244	6,980×10 ⁻⁵	0,40	5,8612×10 ⁵	

* Интенсивность для ²³⁷U рассчитана в предположении равновесия ²⁴¹Pu-²³⁷U. Выход для ²³⁷U включает вероятность 2,46×10⁻⁵ альфа-распада ²⁴¹Pu в ²³⁷U.

** Рентгеновское излучение плутония образуется в образцах большой массы или высокой концентрации при возбуждении флюоресценции гамма-квантами или альфа-частицами.

8.3.3 Область энергии 125 кэВ

Область энергии 125 кэВ используется для измерения ²⁴¹Am и ²³⁹Pu с помощью гамма-линий 125,29 и 129,29 кэВ. Имеется сильная интерференция гамма-линии с энергией 125,29 кэВ изотопа ²⁴¹Am с линиями 125,21 и 125,51 кэВ изотопа ²³⁹Pu. Площадь пика ²⁴¹Am трудно измерить при концентрациях ²⁴¹Am ниже нескольких сотен микрограммов на грамм плутония. При концентрации амери-

ция около 500 мкг на грамм плутония вклад интерференции ^{239}Pu составляет более 50 % от площади пика с энергией 125,3 кэВ; при концентрации америция около 5000 мкг на грамм плутония — свыше 90 % площади пика принадлежит ^{241}Am . Интерференция ^{239}Pu может быть устранена с помощью метода подгонки пика [17] или вычитания пика [18]. Во многих экспериментах используются поглотители или фильтры (см. раздел 8.5.3) для снижения скорости счета от низкоэнергетического гамма-излучения. Эти поглотители воздействуют на скорость счета в области 125 кэВ. Кадмиевый фильтр толщиной 0,15 см пропускает только 35 % падающего излучения с энергией 125,3 кэВ.

В табл. 8.5 приведены энергии и интенсивности гамма-излучения в области спектра 125 кэВ, которая показана на рис. 8.7. Рентгеновские K_{β} -линии плутония с энергиями 116,3, 117,3 и 120,6 кэВ (не указанные в табл. 8.5) затрудняют анализ в этой области, т.к. ниже 124,5 кэВ трудно найти область фона, свободную от интерференции. Плутоний высокого выгорания (сплошная линия на рис. 8.7) обычно дает более сильный пик ^{241}Am , но более слабый пик ^{239}Pu , чем плутоний низкого выгорания. Для материала высокого выгорания точность определения пика 129,29 кэВ изотопа ^{239}Pu ниже, т.к. в таком образце меньше ^{239}Pu и потому, что фон

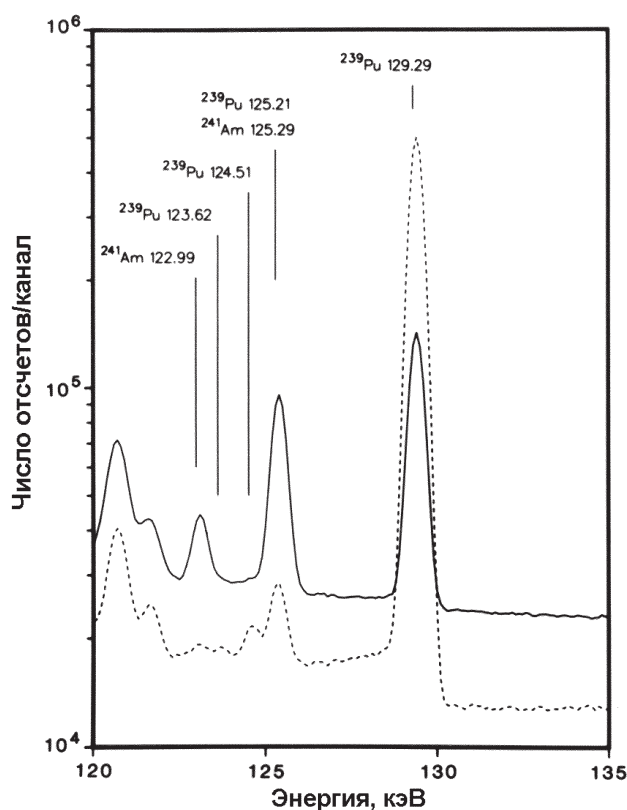


Рис. 8.7. Спектр гамма-излучения образцов PuO_2 в области энергии 125 кэВ, измеренный с помощью детектора ОЧГ с разрешением 490 эВ при энергии 122 кэВ. Изотопный состав (вес. %): (сплошная линия) — ^{238}Pu — 0,378 %; ^{239}Pu — 78,89 %; ^{240}Pu — 15,28 %; ^{241}Pu — 4,42 %; ^{242}Pu — 1,04 %; ^{241}Am — 14 300 мкг/г Pu ; (пунктирная линия) — ^{238}Pu — 0,016 %; ^{239}Pu — 93,51 %; ^{240}Pu — 6,15 %; ^{241}Pu — 0,28 %; ^{242}Pu — 0,039 %; ^{241}Am — 480 мкг/г Pu

под пиком обычно выше вследствие наличия мощного гамма-излучения ^{241}Pu и ^{237}U при больших энергиях.

Таблица 8.5 – Энергии пиков в области 125 кэВ и их интенсивности [9]

Изотоп	Энергия, кэВ	Выход, квант/распад	Погрешность, %	Интенсивность, квант/с·г
^{239}Pu	119,708	$3,000 \times 10^{-7}$	2,00	$6,8825 \times 10^2$
^{241}Pu	121,200	$6,850 \times 10^{-9}$		$2,6197 \times 10^4$
^{241}Am	122,994	$1,000 \times 10^{-5}$	0,80	$1,2655 \times 10^6$
^{239}Pu	123,620	$1,970 \times 10^{-7}$	6,00	$4,5195 \times 10^2$
^{239}Pu	124,510	$6,130 \times 10^{-7}$	3,00	$1,4063 \times 10^3$
^{239}Pu	125,210	$7,110 \times 10^{-7}$	2,00	$1,6311 \times 10^3$
^{241}Am	125,292	$4,080 \times 10^{-5}$	0,50	$5,1633 \times 10^6$
^{239}Pu	129,294	$6,260 \times 10^{-5}$	0,20	$1,4063 \times 10^5$

8.3.4 Область энергии 148 кэВ

Наиболее важными в области энергии 148 кэВ являются пики 148,57 кэВ от ^{241}Pu и 152,68 кэВ от ^{238}Pu . Пик 148,57 кэВ — единственный используемый пик гамма-излучения вне сложной области 100 кэВ, непосредственно происходящий от ^{241}Pu . Пик 152,68 кэВ, хотя и более слабый, часто является единственным используемым от ^{238}Pu в области энергий выше 100 кэВ (для некоторых высоко выгоревших образцов для измерения ^{238}Pu может быть использован пик 766,4 кэВ). При измерении изотопного состава часто используются гамма-линии ^{239}Pu с энергиями 144,21 и 143,35 кэВ; однако в смешанных оксидных образцах с ними может интерферировать линия 143,76 кэВ от ^{235}U . Пики 146,56 и 150,11 кэВ от ^{241}Am затрудняют установку окон и определение фона для методик, использующих простое суммирование каналов для определения площади пиков. В системах, которые используют эталонный источник ^{109}Cd , может возникать дополнительная интерференция [11, 12]. Здесь энергия гамма-излучения 88,04 кэВ от ^{109}Cd может складываться с энергией гамма-излучения 59,54 кэВ от ^{241}Am , давая пик наложения с суммарной энергией 147,6 кэВ. Другие суммарные пики могут интерферировать с пиком 152,68 кэВ от ^{238}Pu (94,66 кэВ рентгеновской $K_{\alpha 2}$ -линии урана плюс 59,54 кэВ от ^{241}Am равно 154,2 кэВ).

Слабый пик 153 кэВ от ^{238}Pu обычно расположен на высоком пьедестале фона и дает низкую точность для материала низкого выгорания (0,01 вес. % ^{238}Pu). При типичных измерениях сходимость может быть ниже 10 %. Широко признано, что выход гамма-излучения с энергией 153 кэВ приблизительно на 2,5 % ниже, чем величина, приведенная в табл. 8.6. Отклонения значений выхода обсуждаются в работе [19]. На рис. 8.8 изображены пики в этой области энергии для материалов высокого и низкого выгорания.

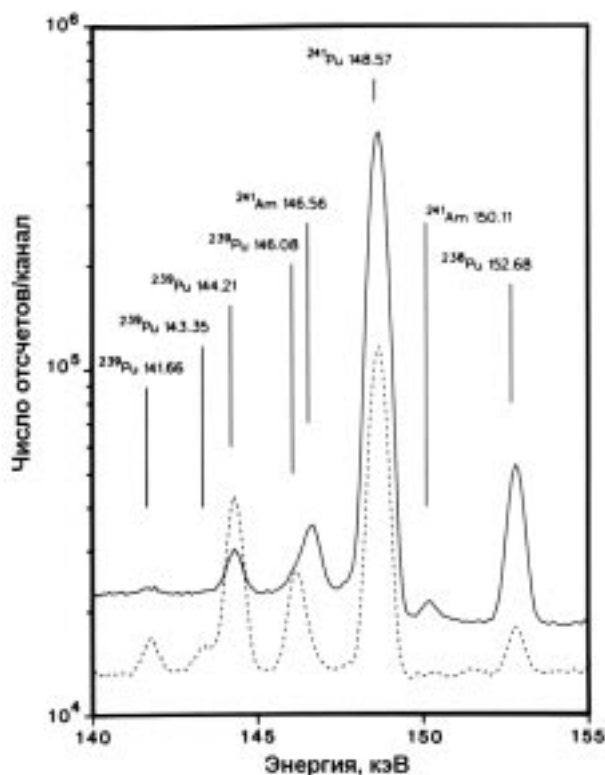


Рис. 8.8. Спектр гамма-излучения образцов PuO_2 в области энергии 148 кэВ, измеренный с помощью детектора ОЧГ с разрешением 490 эВ при энергии 122 кэВ. Изотопный состав (вес. %): (сплошная линия) – ^{238}Pu – 0,378 %; ^{239}Pu – 78,89 %; ^{240}Pu – 15,28 %; ^{241}Pu – 4,42 %; ^{242}Pu – 1,04 %; ^{241}Am – 14 300 мкг/г Pu ; (пунктирная линия) – ^{238}Pu – 0,016 %; ^{239}Pu – 93,51 %; ^{240}Pu – 6,15 %; ^{241}Pu – 0,28 %; ^{242}Pu – 0,039 %; ^{241}Am – 480 мкг/г Pu

Таблица 8.6 – Энергии пиков в области 148 кэВ и их интенсивности [9]

Изотоп	Энергия, кэВ	Выход, квант/распад	Погрешность, %	Интенсивность, квант/с·г
^{239}Pu	141,657	$3,200 \times 10^{-7}$	2,00	$7,3413 \times 10^2$
^{239}Pu	143,350	$1,730 \times 10^{-7}$	4,00	$3,9689 \times 10^2$
^{239}Pu	144,211	$2,830 \times 10^{-6}$	0,60	$6,4925 \times 10^3$
^{239}Pu	146,077	$1,190 \times 10^{-6}$	0,60	$2,7300 \times 10^3$
^{241}Am	146,557	$4,610 \times 10^{-6}$	1,00	$5,8340 \times 10^5$
^{241}Pu	148,567	$1,870 \times 10^{-6}$	0,30	$7,1516 \times 10^6$
^{241}Am	150,110	$7,400 \times 10^{-7}$	2,00	$9,3648 \times 10^4$
^{238}Pu	152,680	$9,560 \times 10^{-6}$	0,50	$6,0544 \times 10^6$

8.3.5 Область энергии 160 кэВ

Для систем с одним детектором, в которых не используются области энергии 40 или 100 кэВ, для измерения ^{240}Pu может быть использована только область 160 кэВ. В табл. 8.7 приведены энергии и интенсивности основных гамма-квантов в области 160 кэВ. Гамма-линия ^{240}Pu с энергией 160,28 кэВ сильно интерферирует с линиями 159,95 кэВ от ^{241}Pu и 160,19 кэВ от ^{239}Pu . Этот комплекс из трех пиков (см. рис. 8.9) только частично разрешается от линии ^{239}Pu с энергией 161,45 кэВ. Для выделения интенсивности ^{240}Pu могут быть использованы методы подгонки пика, вычитания пика или функции соответствия. Содержание ^{240}Pu редко измеряется со статистической точностью лучше, чем ~2 %.

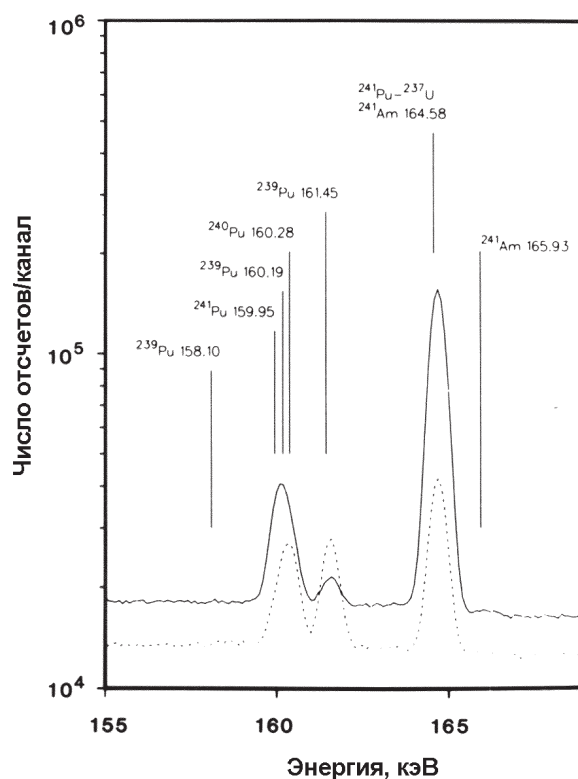


Рис. 8.9. Спектр гамма-излучения образцов PuO_2 в области энергии 160 кэВ, измеренный с помощью детектора ОЧГ с разрешением 490 эВ при энергии 122 кэВ. Изотопный состав (вес. %): (сплошная линия) — ^{238}Pu — 0,378 %, ^{239}Pu — 78,89 %, ^{240}Pu — 15,28 %, ^{241}Pu — 4,42 %, ^{242}Pu — 1,04 %, ^{241}Am — 14 300 мкг/г Pu; (пунктирная линия) — ^{238}Pu — 0,016 %, ^{239}Pu — 93,51 %, ^{240}Pu — 6,15 %, ^{241}Pu — 0,28 %, ^{242}Pu — 0,039 %, ^{241}Am — 480 мкг/г Pu

Интенсивность всего этого комплекса возрастает при увеличении выгорания, но вклад ^{240}Pu уменьшается. В табл. 8.8 показано, как относительный вклад излучения ^{240}Pu в комплекс 160 кэВ уменьшается с почти 70 % для материала с 6 % ^{240}Pu до 25 % для материала с 20 % ^{240}Pu . Это снижение происходит из-за того, что с увеличением выгорания доля ^{241}Pu растет быстрее, чем доля ^{240}Pu .

Таблица 8.7 – Энергии пиков в области 160 кэВ и их интенсивности [9]

Изотоп	Энергия, кэВ	Выход, квант/распад	Погрешность, %	Интенсивность, квант/с·г
²³⁹ Pu	158,100	$1,000 \times 10^{-8}$	10,00	$2,2942 \times 10^1$
²⁴¹ Pu	159,955	$6,740 \times 10^{-8}$		$2,5776 \times 10^5$
²³⁹ Pu	160,190	$6,200 \times 10^{-8}$	20,00	$1,4224 \times 10^2$
²⁴⁰ Pu	160,280	$4,020 \times 10^{-6}$	0,70	$3,3756 \times 10^4$
²³⁹ Pu	161,450	$1,200 \times 10^{-6}$	0,40	$2,7530 \times 10^3$
²³⁷ U	164,580	$4,526 \times 10^{-7}$	0,50	$1,7311 \times 10^6$ *
²⁴¹ Am	164,580	$6,670 \times 10^{-7}$	3,00	$8,4410 \times 10^4$
²⁴¹ Am	165,930	$2,320 \times 10^{-7}$	4,00	$2,9360 \times 10^4$

* Интенсивность ²³⁷U рассчитана в предположении равновесия ²⁴¹Pu-²³⁷U. Выход для ²³⁷U включает вероятность $2,46 \times 10^{-5}$ альфа-распада ²⁴¹Pu в ²³⁷U.

Поскольку пик 164,58 кэВ принадлежит ²³⁷U, дочернему продукту ²⁴¹Pu, он может быть использован для измерения ²⁴¹Pu только после установления равновесия. Часто делается поправка на вклад ²⁴¹Am в пик 164,58 кэВ. Сумма рентгеновского и гамма-излучения из области 100 кэВ с гамма-линией 59,5 кэВ от ²⁴¹Am может интерферировать с комплексом линий в области энергий 160 кэВ. Этот суммарный пик может быть ослаблен с помощью фильтра для селективного поглощения рентгеновского и гамма-излучения из областей 60 и 100 кэВ перед их взаимодействием с детектором [20]. В образцах смешанных оксидных материалов пик 163,35 кэВ от ²³⁵U может интерферировать с пиком 164,58 кэВ, если отношение ²³⁵U к ²⁴¹Pu больше, чем приблизительно 1,5.

Таблица 8.8 – Компоненты гамма-комплекса в области энергий 160 кэВ

Изотоп Pu	Содержание, вес. %	Вклад в комплекс области энергий 160 кэВ от данного изотопа, %
239	93,5	4,5
240	6,0	69,1
241	0,3	26,4
239	86,0	1,5
240	12,0	50,4
241	1,5	48,1
239	67,0	0,3
240	20,0	24,6
241	8,0	75,1

8.3.6 Область энергии 208 кэВ

В области энергии 208 кэВ доминирует сильный пик ^{241}Pu - ^{237}U с энергией 208,00 кэВ. Обычно это наиболее интенсивный пик в спектре. Он содержит вклад от ^{241}Am , который после 4 лет составляет приблизительно 1% (относительных). Поскольку это гамма-излучение происходит от ^{237}U , оно может быть использовано для анализа образцов плутония только с возрастом более 7 недель после очистки. Интенсивность пика и отсутствие интерференции делают его пригодным для градуировки по форме и энергии для аналитических методик, использующих подгонку пика или функцию соответствия. Для смеси оксидов пики 202,1 и 205,3 кэВ от ^{235}U могут интерферировать с линией 203,54 кэВ от ^{239}Pu . Отношение $^{239}\text{Pu}/^{241}\text{Pu}$ по паре линий 203,54/208,00 дает наилучшие результаты для материалов с низким выгоранием. Для материалов с высоким выгоранием точность измерения пика 203,54 кэВ от ^{239}Pu становится хуже из-за комптоновского фона и длинного хвоста от очень сильного пика 208,00 кэВ изотопа ^{237}U . Высокое содержание ^{241}Am (~1 %) может вызвать интерференцию в нескольких десятых долей процента с пиком 203,5 кэВ; однако эффект от этой интерференции может быть легко устранен. В табл. 8.9 перечислены параметры, а на рис. 8.10 показаны спектральные характеристики области энергии 208 кэВ.

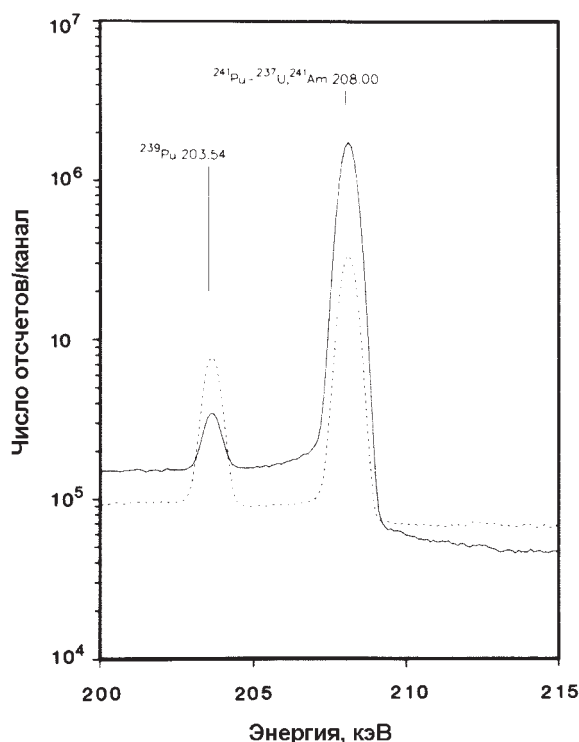


Рис. 8.10. Спектр гамма-излучения образцов PuO_2 в области энергии 208 кэВ, измеренный с помощью детектора ОЧГ с разрешением 490 эВ при энергии 122 кэВ. Изотопный состав (вес. %): (сплошная линия) — ^{238}Pu — 0,378 %; ^{239}Pu — 78,89 %; ^{240}Pu — 15,28 %; ^{241}Pu — 4,42 %; ^{242}Pu — 1,04 %; ^{241}Am — 14 300 мкг/г Pu ; (пунктирная линия) — ^{238}Pu — 0,016 %; ^{239}Pu — 93,51 %; ^{240}Pu — 6,15 %; ^{241}Pu — 0,28 %; ^{242}Pu — 0,039 %; ^{241}Am — 480 мкг/г Pu

Таблица 8.9 – Энергии пиков в области 208 кэВ и их интенсивности [9]

Изотоп	Энергия, кэВ	Выход, квант/распад	Погрешность, %	Интенсивность, квант/с·г
²³⁹ Pu	203,537	$5,600 \times 10^{-6}$	0,20	$1,2847 \times 10^4$
²⁴¹ Am	203,870	$2,900 \times 10^{-8}$	6,00	$3,6700 \times 10^3$
²³⁷ U	208,000	$5,338 \times 10^{-6}$	0,20	$2,0415 \times 10^7$ *
²⁴¹ Am	208,000	$7,910 \times 10^{-6}$	0,50	$1,0010 \times 10^6$

* Интенсивность ²³⁷U рассчитана в предположении равновесия ²⁴¹Pu-²³⁷U. Выход для ²³⁷U включает вероятность $2,46 \times 10^{-5}$ альфа-распада ²⁴¹Pu в ²³⁷U.

8.3.7 Область энергии 332 кэВ

Область энергии 332 кэВ состоит из пиков ²⁴¹Pu-²³⁷U, ²⁴¹Am и ²³⁹Pu, как показано в табл. 8.10 и на рис. 8.11. При анализе старых материалов высокого выгорания для измерения отношения ²³⁹Pu/²⁴¹Pu используется отношение пика 345,01 кэВ от ²³⁹Pu к пику 332,35 кэВ от ²⁴¹Pu-²³⁷U. Оба пика 332,35 и 335,40 кэВ от ²⁴¹Pu-²³⁷U имеют очень тесную интерференцию с пиками ²³⁹Pu. Рис. 8.11 для образца материала очень низкого выгорания (98 % ²³⁹Pu) иллюстрирует, как тесно расположены эти два интерферирующих пика. В табл. 8.11 даны относительные величины этих интерферирующих пиков ²³⁹Pu для различных изотопных смесей. Для измерения отношения ²⁴¹Pu/²⁴¹Am после удаления интерферирующих линий ²³⁹Pu могут быть использованы оба комплекса пиков с обеими компонентами ²⁴¹Pu-²³⁷U и ²⁴¹Am [3]. При анализе этой области энергии используются методы подгонки пика, вычитания пика или функции соответствия.

Таблица 8.10 – Энергии пиков в области 332 кэВ и их интенсивности [9]

Изотоп	Энергия, кэВ	Выход, квант/распад	Погрешность, %	Интенсивность, квант/с·г
²³⁷ U	332,354	$2,977 \times 10^{-7}$	0,30	$1,1384 \times 10^6$ *
²⁴¹ Am	332,354	$1,490 \times 10^{-6}$	0,30	$1,8856 \times 10^5$
²³⁹ Pu	332,838	$5,060 \times 10^{-6}$	0,20	$1,1608 \times 10^4$
²³⁷ U	335,405	$2,386 \times 10^{-8}$	1,00	$9,1258 \times 10^4$ *
²⁴¹ Am	335,405	$4,960 \times 10^{-6}$	0,30	$6,2769 \times 10^5$
²³⁹ Pu	336,107	$1,134 \times 10^{-6}$	0,30	$2,6016 \times 10^3$
²⁴¹ Am	337,720	$4,290 \times 10^{-8}$	5,00	$5,4290 \times 10^3$
²³⁷ U	337,720	$2,189 \times 10^{-9}$	5,00	$8,3732 \times 10^3$ *
²³⁷ U	340,450	$4,059 \times 10^{-10}$	20,00	$1,5523 \times 10^3$ *
²³⁹ Pu	341,510	$6,620 \times 10^{-7}$	0,40	$1,5187 \times 10^3$
²³⁹ Pu	345,014	$5,592 \times 10^{-6}$	0,20	$1,2829 \times 10^4$

* Интенсивность ²³⁷U рассчитана в предположении равновесия ²⁴¹Pu-²³⁷U. Выход для ²³⁷U включает вероятность $2,46 \times 10^{-5}$ альфа-распада ²⁴¹Pu в ²³⁷U.

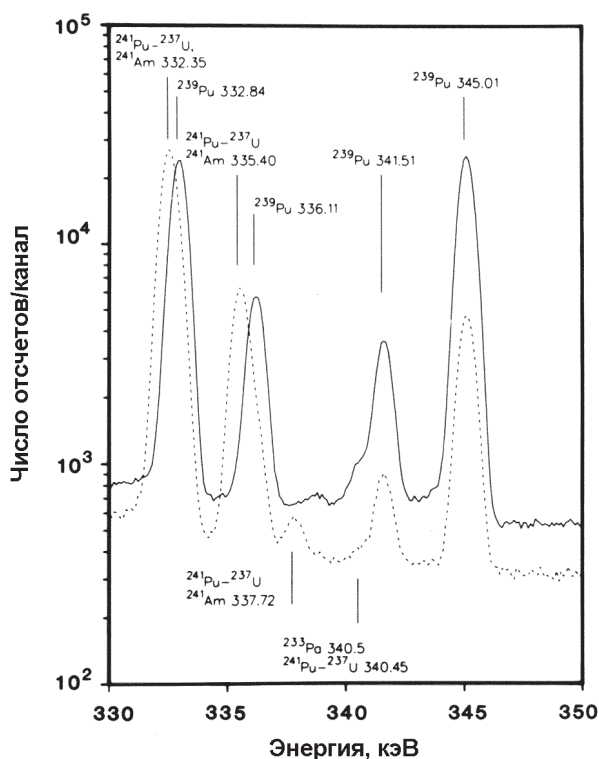


Рис. 8.11. Спектр гамма-излучения образцов PuO_2 в области энергии 332 кэВ, измеренный с помощью детектора ОЧГ с разрешением 490 эВ при энергии 122 кэВ. Изотопный состав (вес. %): (сплошная линия) – ^{238}Pu – 0,0024 %; ^{239}Pu – 97,96 %; ^{240}Pu – 2,01 %; ^{241}Pu – 0,020 %; ^{242}Pu – 0,0030 %; ^{241}Am – 11 мкг/г Pu ; (пунктирная линия) – ^{238}Pu – 0,378 %; ^{239}Pu – 78,89 %; ^{240}Pu – 15,28 %; ^{241}Pu – 4,42 %; ^{242}Pu – 1,04 %; ^{241}Am – 14 300 мкг/г Pu

Таблица 8.11 – Компоненты гамма-комплексов 332 и 336 кэВ (вклад ^{241}Am пренебрежимо мал)

Изотоп Pu	Содержание, вес. %	Вклад в комплекс 332 кэВ от данного изотопа	Вклад в комплекс 336 кэВ от данного изотопа
239	93,5	76,1	89,9
241	0,3	23,9	10,1
239	86,0	36,9	62
241	1,5	63,1	38
239	67,0	7,9	19,3
241	8,0	92,1	80,7

8.3.8 Область энергии 375 кэВ

Область энергии 375 кэВ, показанная в табл. 8.12 и на рис. 8.12, состоит из пиков тех же изотопов, что и область 332 кэВ: ^{241}Pu - ^{237}U , ^{241}Am и ^{239}Pu . Для всех изотопов, кроме ^{239}Pu , выход гамма-квантов ниже, чем в области 332 кэВ, поэтому информация о содержании изотопов будет менее точной. Сильный пик 375,04 кэВ от ^{239}Pu часто используется для определения относительной эффективности детектора. Интерференция линии 376,59 кэВ изотопа ^{241}Am становится существенной при содержании выше нескольких тысяч микрограммов на грамм плутония.

Таблица 8.12 – Энергии пиков в области 375 кэВ и их интенсивности [9]

Изотоп	Энергия, кэВ	Выход, квант/распад	Погрешность, %	Интенсивность, квант/с·г
^{239}Pu	367,050	$8,650 \times 10^{-7}$	0,30	$1,9844 \times 10^3$
^{239}Pu	368,550	$9,030 \times 10^{-7}$	0,30	$2,0716 \times 10^3$
^{237}U	338,605	$1,055 \times 10^{-8}$	2,00	$4,0360 \times 10^4 *$
^{241}Am	338,605	$2,170 \times 10^{-6}$	0,30	$2,7462 \times 10^5$
^{237}U	370,934	$2,713 \times 10^{-8}$	1,40	$1,0377 \times 10^5 *$
^{241}Am	370,934	$5,230 \times 10^{-7}$	0,80	$6,6186 \times 10^4$
^{239}Pu	375,042	$1,570 \times 10^{-5}$	0,10	$3,6018 \times 10^4$
^{241}Am	376,595	$1,383 \times 10^{-6}$	0,70	$1,7502 \times 10^5$
^{239}Pu	380,166	$3,051 \times 10^{-6}$	0,20	$6,9995 \times 10^3$
^{239}Pu	382,751	$2,587 \times 10^{-6}$	0,20	$5,9350 \times 10^3$
^{241}Am	383,740	$2,820 \times 10^{-7}$	1,50	$3,5687 \times 10^4$

* Интенсивность ^{237}U рассчитана в предположении равновесия ^{241}Pu - ^{237}U . Выход для ^{237}U включает вероятность $2,46 \times 10^{-5}$ альфа-распада ^{241}Pu в ^{237}U .

8.3.9 Область энергии 640 кэВ

На рис. 8.13 и в табл. 8.13 представлены спектральные характеристики в области энергии 640 кэВ. Это единственная область выше 160 кэВ, которая может быть использована для измерения ^{240}Pu . Эта область применяется только для больших образцов из-за низкой интенсивности гамма-линии 642,48 кэВ изотопа ^{240}Pu . Близко расположенные линии ^{239}Pu и ^{241}Am усложняют эту область. Для измерения ^{239}Pu и ^{241}Am используются пики 645,97 и 662,42 кэВ. Остальное гамма-излучение в этой области обычно не используется, но должно учитываться при анализе методами подгонки пика или функции соответствия.

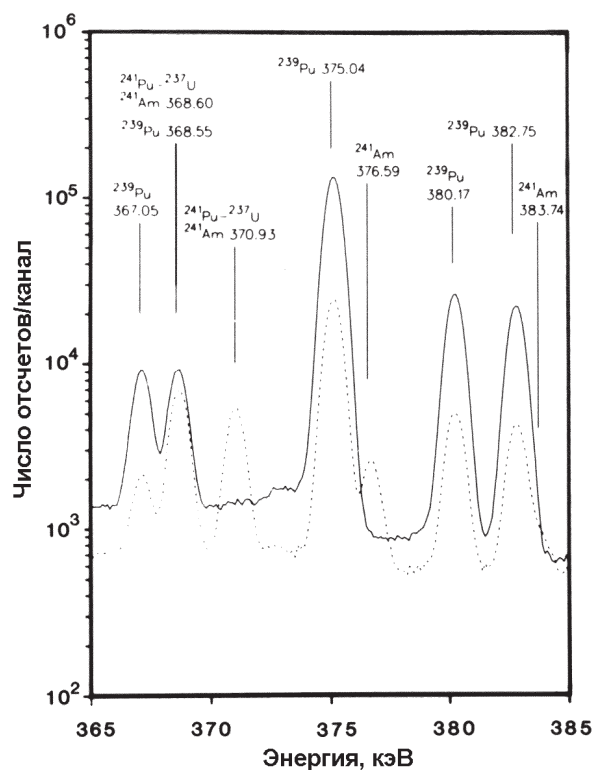


Рис. 8.12. Спектр гамма-излучения образцов PuO_2 в области энергии 375 кэВ, измеренный с помощью детектора ОЧГ с разрешением 490 эВ при энергии 122 кэВ. Изотопный состав (вес. %): (сплошная линия) — ^{238}Pu — 0,0024 %; ^{239}Pu — 97,96 %; ^{240}Pu — 2,01 %; ^{241}Pu — 0,020 %; ^{242}Pu — 0,0030 %; ^{241}Am — 11 мкг/г Pu; (пунктирная линия) — ^{238}Pu — 0,378 %; ^{239}Pu — 78,89 %; ^{240}Pu — 15,28 %; ^{241}Pu — 4,42 %; ^{242}Pu — 1,04 %; ^{241}Am — 14 300 мкг/г Pu

В области 640 кэВ должен использоваться коаксиальный детектор большого объема (с относительной эффективностью 10 % или более). Аналитические схемы, которые также анализируют данные для областей энергии от 100 до 400 кэВ, должны использовать два детектора [20].

Если в образце присутствуют продукты деления, такие как ^{95}Zr - ^{95}Nb и ^{137}Cs , их гамма-излучение может усложнить анализ в области 640 кэВ. Концентрация продуктов деления, даже такая низкая, как 10 мкКи/г плутония, может сделать анализ в этой области невозможным.

Таблица 8.13 – Энергии пиков в области 640 кэВ и их интенсивности [9]

Изотоп	Энергия, кэВ	Выход, квант/распад	Погрешность, %	Интенсивность, квант/с·г
²⁴¹ Am	633,000	1,260×10 ⁻⁸	15,00	1,5945×10 ³
²³⁹ Pu	633,150	2,530×10 ⁻⁸	1,20	5,8042×10 ¹
²³⁹ Pu	637,837	2,560×10 ⁻⁸	1,20	5,8730×10 ¹
²³⁹ Pu	640,075	8,200×10 ⁻⁸	0,60	1,8812×10 ²
²⁴¹ Am	641,420	7,100×10 ⁻⁸	4,00	8,9851×10 ³
²⁴⁰ Pu	642,480	1,245×10 ⁻⁷	1,00	1,0454×10 ³
²³⁹ Pu	645,969	1,489×10 ⁻⁷	0,40	3,4160×10 ²
²³⁹ Pu	649,321	7,120×10 ⁻⁹	7,00	1,6334×10 ¹
²³⁹ Pu	650,529	2,700×10 ⁻⁹	15,00	6,1942×10 ⁰
²³⁹ Pu	652,074	6,550×10 ⁻⁸	0,60	1,5027×10 ²
²⁴¹ Am	652,960	3,770×10 ⁻⁷	2,00	4,7710×10 ⁴
²³⁹ Pu	654,880	2,250×10 ⁻⁸	1,20	5,1618×10 ¹
²³⁹ Pu	658,929	9,690×10 ⁻⁸	0,70	2,2230×10 ²
²⁴¹ Am	662,420	3,640×10 ⁻⁶	0,30	4,6065×10 ⁵
²³⁹ Pu	664,587	1,657×10 ⁻⁸	1,60	3,8014×10 ¹
²³⁹ Pu	668,200	3,930×10 ⁻¹⁰	30,00	9,0160×10 ⁻¹

8.4 ОСНОВЫ ИЗМЕРЕНИЙ

8.4.1 Измерение изотопных отношений

Площадь фотопика для одиночной гамма-линии может быть записана в виде

$$C(E_j^i) = \lambda^i N^i BR_j^i \varepsilon(E_j), \quad (8.1)$$

где $C(E_j^i)$ — площадь фотопика j -й гамма-линии с энергией E_j , испущенной i -м изотопом;

λ^i — постоянная распада i -го изотопа ($\lambda^i = \ln 2 / T_{1/2}^i$, где $T_{1/2}^i$ — период полураспада i -го изотопа);

N^i — число атомов i -го изотопа;

BR_j^i — выход гамма-квантов (число квантов/распад) j -й гамма-линии i -го изотопа;

$\varepsilon(E_j)$ — полная эффективность регистрации фотопика гамма-излучения с энергией E_j ; включает эффективность детектора, геометрические факторы, самопоглощение в образце и ослабление в материалах между образцом и детектором.

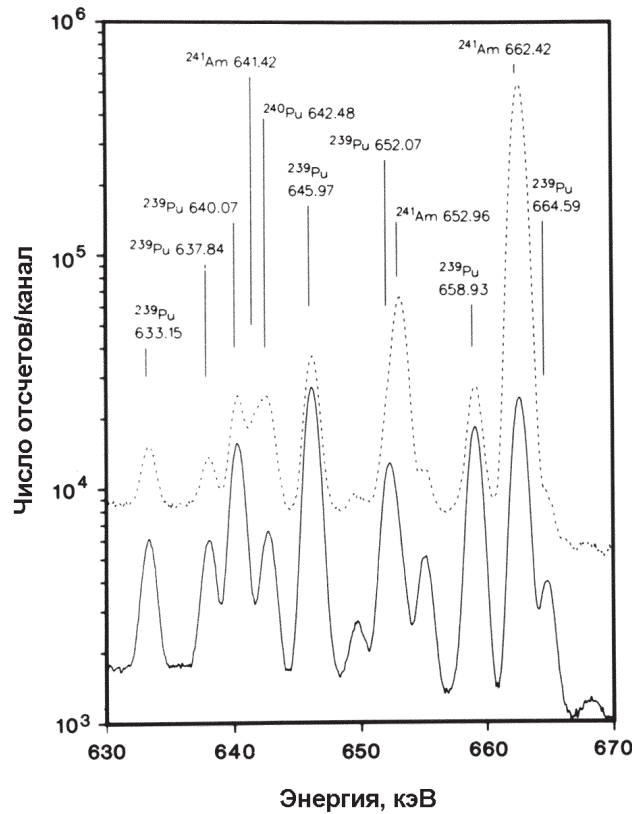


Рис. 8.13. Спектр гамма-излучения в области энергии 640 кэВ. Пунктирная линия: 530 г плутония в виде PuO_2 , измеренные с помощью коаксиального ОЧГ детектора (при энергии 1332 кэВ: эффективность — 10,2 %, ширина пика на полувысоте — 1,65 кэВ). Изотопный состав (вес. %): ^{238}Pu — 0,302 %; ^{239}Pu — 82,49 %; ^{240}Pu — 13,75 %; ^{241}Pu — 2,69 %; ^{242}Pu — 0,76 %; ^{241}Am — 11 800 мкг/г Pu . Сплошная линия: 500 г металлического плутония, измеренные с помощью коаксиального ОЧГ детектора (при энергии 1332 кэВ: эффективность — 11,7 %, ширина пика на полувысоте — 1,75 кэВ). Изотопный состав (вес. %): ^{238}Pu — 0,012 %; ^{239}Pu — 93,82 %; ^{240}Pu — 5,90 %; ^{241}Pu — 0,240 %; ^{242}Pu — 0,02 %; ^{241}Am — 630 мкг/г Pu

Площадь фотопика также может быть записана через массу изотопа в виде:

$$C(E_j^i) = \gamma_j^i M_i \epsilon(E_j), \quad (8.2)$$

где γ_j^i — интенсивность квантов j -й гамма-линии i -го изотопа, квант/с·г;
 M_i — масса i -го изотопа, г.

Эти два уравнения могут быть преобразованы таким образом, чтобы получить выражения для отношения масс и количеств атомов двух изотопов. Атомарное отношение дается выражением

$$\frac{N^i}{N^k} = \frac{C(E_j^i)}{C(E_m^k)} \times \frac{T_{1/2}^i}{T_{1/2}^k} \times \frac{BR_m^k}{BR_j^i} \times \frac{RE(E_m)}{RE(E_j)}. \quad (8.3)$$

Аналогичное выражение для отношения масс составляет

$$\frac{M^i}{M^k} = \frac{C(E_j^i)}{C(E_m^k)} \times \frac{\gamma_m^k}{\gamma_j^i} \times \frac{RE(E_m)}{RE(E_j)}. \quad (8.4)$$

В уравнениях (8.3) и (8.4) площадь фотопика $C(E)$ измеряется, а период полураспада $T_{1/2}$, выход гамма-квантов BR и интенсивность квантов γ либо известны, либо могут быть рассчитаны из ядерных данных. Общая эффективность выражается через относительную эффективность RE . Геометрические факторы отбрасываются и отношение относительных эффективностей учитывает только самопоглощение в образце, ослабление в материалах между образцом и детектором и эффективность детектора. Использование отношения эффективностей избавляет от необходимости воспроизведения геометрии и делает метод изотопных отношений применимым к образцам произвольного размера, формы и состава.

График относительной эффективности должен быть построен при измерении спектра каждого образца. Уравнения (8.1) и (8.2) дают следующую пропорциональную зависимость для одиночной гамма-линии i -го изотопа:

$$\varepsilon(E_j) \propto RE(E_j) \propto \frac{C(E_j^i)}{BR_j^i} \propto \frac{C(E_j^i)}{\gamma_j^i}. \quad (8.5)$$

Поскольку в уравнениях (8.3) и (8.4) используется отношение эффективностей, важна только форма графика относительной эффективности. Поэтому может быть использовано любое из отношений, приведенных в формуле (8.5). Для построения кривой относительной эффективности используются площади пиков $C(E)$ сильных, свободных от интерференции гамма-линий одиночных изотопов. Для определения относительной эффективности при энергиях между точками измерения используются методики подгонки кривых [17] или интерполяции. Для лучшего построения кривой относительной эффективности могут быть использованы точки более чем одного изотопа путем нормировки одного изотопа на другой [17,18]. Наиболее часто для построения кривой относительной эффективности в диапазоне энергии от 130 до 450 кэВ используются гамма-линии изотопов ^{239}Pu и ^{241}Pu - ^{237}U . На рис. 8.14 показаны два примера измерения кривой относительной эффективности.

При измерении изотопных отношений выгодно использовать близко расположенные гамма-линии потому, что отношения соответствующих относительных эффективностей будут около единицы. Однако в области от 120 до 200 кэВ поправки к относительной эффективности необходимо применять даже для близко расположенных линий. Типичная поправка для отношения линий 152,7 кэВ/148,6 кэВ ($^{238}\text{Pu}/^{241}\text{Pu}$) может составлять 10 %.

После того как измерены соответствующие изотопные отношения, обычно желательно вычислить абсолютные значения изотопных содержаний. Сумма всех изотопных содержаний должна равняться единице. Это подразумевает, что, если пренебречь ^{242}Pu , то:

$$1 = f_{238} + f_{239} + f_{240} + f_{241}, \quad (8.6)$$

где f_i — изотопное содержание i -го изотопа.

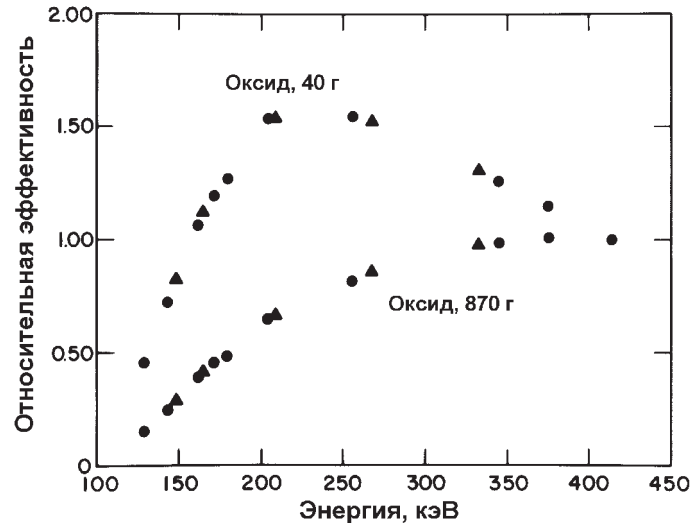


Рис. 8.14. Типичные кривые относительной эффективности для ОЧГ детектора площадью 200 мм^2 , толщиной 10 мм . Пикам ^{239}Pu соответствуют сплошные кружки, пикам ^{241}Pu - ^{237}U — сплошные треугольники. Обе кривые нормированы на 1,00 при энергии 414 кэВ . Кривая для образца PuO_2 , массой 870 г демонстрирует эффект сильного ослабления

Деление уравнения (8.6) на f_{241} дает

$$\frac{1}{f_{241}} = \frac{f_{238}}{f_{241}} + \frac{f_{239}}{f_{241}} + \frac{f_{240}}{f_{241}} + 1 \quad (8.7)$$

Формула (8.7) выражает содержание изотопа ^{241}Pu (f_{241}) через три измеряемые изотопные отношения f_{238}/f_{241} , f_{239}/f_{241} и f_{240}/f_{241} . Содержание остальных изотопов получается из формулы

$$f_i = f_{241} \times \left[\frac{f_i}{f_{241}} \right], \quad (8.8)$$

где $i = 238, 239, 240$.

Вклад ^{242}Pu в этот анализ рассматривается в разделе 8.5.3. Абсолютное содержание ^{241}Am может быть рассчитано по формуле (8.9), если может быть измерено отношение ^{241}Am к любому из изотопов плутония (обычно ^{239}Pu):

$$f_{\text{Am}} = f_i \times \frac{f_{\text{Am}}}{f_i} \quad (8.9)$$

Заметим, что эта формула дает весовое или атомарное содержание ^{241}Am в образце по отношению к всему плутонию, а не ко всему образцу.

Метод изотопных отношений может быть применен к образцам произвольного размера, формы и состава. Метод работает, пока изотопный состав плутония и отношение Am/Pu однородны по всему образцу. Если выполняются указанные условия, плутоний по образцу может быть распределен неравномерно. В Маунд-

ской лаборатории метод был усовершенствован для измерения отходов электроочистки солей, которые имели неоднородное отношение Am/Pu [21].

8.4.2 Измерение абсолютной массы изотопа

Хотя метод отношений, рассмотренный в разделе 8.4.1, может применяться для любых образцов, для воспроизводимой геометрии образцов может быть использован более специализированный метод измерения. Абсолютное измерение массы изотопа было использовано Ганнинком и сотрудниками [4, 12, 16] для растворов. В этом методе используется уравнение

$$C(E_j^i) = K_j^i m^i, \quad (8.10)$$

где $C(E_j^i)$ — площадь фотопика j -й гамма-линии с энергией E_j , испущенной i -м изотопом;

K_j^i — градуировочная постоянная для j -й гамма-линии i -го изотопа;

m^i — масса i -го изотопа в образце.

Для определения градуировочных постоянных используются стандартные образцы, которые имеют ту же геометрию, что и исследуемые образцы. Для учета разницы, которая может быть между стандартными и исследуемыми образцами, могут потребоваться поправки на самопоглощение. Для сведения к минимуму (но не исключению) поправок на самопоглощение размеры и форма образцов тщательно подбираются. Когда известна масса каждого изотопа в образце, изотопные содержания могут быть получены из выражения

$$f_i = \frac{m^i}{\sum_{i=238}^{241} m^i}. \quad (8.11)$$

8.4.3 Изотопная корреляция ^{242}Pu

Изотоп плутония-242 не может быть измерен непосредственно ввиду его низкой активности, малого количества и слабости гамма-линий. Вместо этого для предсказания наличия ^{242}Pu по известным содержаниям других изотопов используется методика изотопной корреляции [8]. Хорошо известно, что между содержаниями изотопов плутония существуют корреляции вследствие природы реакций захвата нейтронов, которые приводят к образованию изотопов плутония. Очень трудно, если не невозможно, найти однозначную корреляцию, которая была бы оптимальной для любого материала, поскольку она зависит от типа реактора и детальной последовательности облучения. Ганнинк [8] предположил, что формула корреляции

$$f_{242} = \frac{K f_{240} f_{241}}{f_{239}^2} \quad (8.12)$$

линейна и относительно независима от типа реактора. Когда изотопное содержание дается в весовых процентах, постоянная K равна 52. Одно из замечаний к этой формуле состоит в том, что в ней имеется зависимость от содержания ^{241}Pu , которое уменьшается приблизительно на 5 % в год. Лучшее всего формула работает, если в содержание ^{241}Pu может быть введена поправка на время после извлечения

топлива из реактора. Если время после извлечения неизвестно, перед вычислением зависимости может быть сделана частичная поправка путем добавления к ^{241}Pu некоторого количества ^{241}Am . Общее количество дает содержание ^{241}Pu на время последнего химического разделения.

В работах [8, 22] была предложена зависимость, не включающая ^{241}Pu :

$$f_{242} = \frac{K f_{240}^2}{f_{239}^3}. \quad (8.13)$$

Эта формула корреляции линейна для заданного типа реактора, но коэффициент K зависит от типа реактора.

После того, как изотопное содержание ^{242}Pu будет определено с использованием подходящей формулы, известных величин или средних величин, остальные изотопные концентрации должны быть откорректированы, используя зависимость

$$f_i^c = f_i(1 - f_{242}), \quad (8.14)$$

где f_i^c — нормированное изотопное содержание, включающее ^{242}Pu . Эта формула перенормирует содержания так, что их сумма для всех изотопов плутония равна единице.

8.5 ПОЛУЧЕНИЕ ДАННЫХ

8.5.1 Электроника

Детальное обсуждение оборудования, используемого для спектрометрии гамма-излучения, приведено в главе 4. Системы изотопных измерений плутония используют общепринятые высококачественные модули ядерного приборостроения в стандарте NIM (Nuclear Instrumentation Modules). Для методов, использующих поканальное суммирование, или методов функции соответствия для оценки площадей пиков требуются цифровое усиление и стабилизация нулевой точки. Для большинства задач используется многоканальный анализатор импульсов с памятью на 4096 каналов. Системам, в которых используются два детектора, требуются два аналого-цифровых преобразователя и память на 8192 каналов.

Анализ больших объемов информации требует, чтобы многоканальный анализатор импульсов был сопряжен с компьютером. Подходящим является 16-рядный миникомпьютер с памятью 32 килобайт. Для хранения программ и файлов данных необходим магнитный диск. После определения площадей пиков простейший анализ может быть выполнен с помощью программируемого калькулятора.

8.5.2 Детекторы

Все аналитические методы выигрывают от использования детектора, который имеет наилучшее разрешение и форму пика. Эти параметры особенно важны, когда выбирается детектор для системы изотопного анализа плутония. В большинстве случаев используется планарный детектор из особо чистого германия (ОЧГ). Детектор с площадью торцевой поверхности от 200 мм² и толщиной от 10 до 13 мм дает хорошее соотношение между разрешением и эффективностью. До-

ступны детекторы с разрешением (полная ширина пика на полувысоте) лучше, чем 500 эВ при энергии 122 кэВ. Хорошую форму пика помогает обеспечить параметр формы пика (отношение ширины пика на высоте одна пятидесятая амплитуды к ширине на полувысоте), равный или более 2,55 при 122 кэВ. Лучшие детекторы имеют величину этого параметра 2,5 и менее. Низкая эффективность планарных детекторов ограничивает их использование областями энергии ниже 400 кэВ. Высококачественные коаксиальные детекторы могут быть использованы в области энергии от 100 до 400 кэВ, но их низкое разрешение осложняет анализ частично разрешенных пиков с использованием метода поканального суммирования.

Для измерений в области энергии 600 кэВ требуется коаксиальный детектор с относительной эффективностью 10 % и лучше. И снова важно разрешение. Отличное разрешение может избавить от необходимости подгонки пика во всей области энергии 600 кэВ [17]. Разрешение 1,7 кэВ или лучше при энергии 1332 кэВ является вполне доступным.

8.5.3 Фильтры

Для снижения фоновой скорости счета от линии 59,54 кэВ изотопа ^{241}Am , которая преобладает в неотфильтрованном спектре любого старого образца, почти во всех случаях необходимо использовать фильтры. Если детектор не имеет фильтра, пик америция суммируется с рентгеновским и гамма-излучением в области энергии 100 кэВ, что приводит к интерференции в области от 150 до 165 кэВ и требует поправки на мертвое время. В типичных фильтрах используют кадмий толщиной от 0,15 до 0,30 см и медь толщиной 0,025 см для селективного поглощения гамма-излучения с энергией 59,54 кэВ. Разумное эмпирическое правило состоит в том, что необходим такой фильтр, который уменьшает амплитуду пика 60 кэВ до уровня ниже амплитуды пиков в области энергии 100 кэВ. Толстый фильтр приведет к нежелательному ослаблению интенсивности важных пиков плутония в области энергии от 120 до 200 кэВ (см. раздел 8.3.3). Дополнительным критерием хорошего фильтра являются плоская форма области спектра между 153 и 160 кэВ и отсутствие суммарных пиков [20]. Более полное обсуждение вопросов разработки и применения фильтров приведено в главе 2.

В меньшей степени фильтрование необходимо для свежевыделенных образцов (отсутствует ^{241}Am или ^{237}U) при использовании области энергии 100 или 40 кэВ. Если детектор экранирован свинцом, экран часто покрывается слоем кадмия толщиной приблизительно 0,25 см для подавления рентгеновского излучения свинца с энергией от 72 до 87 кэВ, которое в противном случае появится в спектре.

8.5.4 Скорость счета и геометрия образец/детектор

Для достижения желаемой скорости счета изменяют расстояние от образца до детектора или применяют коллимирование детектора. Для увеличения разрешения скорость счета обычно поддерживают менее 20000 имп./с. Достижения в области спектрометрии [23, 24] могут вскоре позволить использовать более высокую скорость счета. При измерениях изотопного состава плутония была использована такая высокая скорость счета, как 60000 имп./с [25].

При измерении растворов используют фиксированную геометрию образца и одноразовую ампулу или многоразовую кювету. Толщина образца выбирается исходя из соображений оптимизации измерений с учетом концентрации материала и энергии излучения.

Если небольшой образец размещен слишком близко к детектору, то из-за большого телесного угла, под которым детектор наблюдает образец, гамма-излучение, возникающее при каскадных процессах, может образовывать в спектре суммарные пики [19]. В качестве примера этого эффекта можно привести сложение линий 129 и 203 кэВ изотопа ^{239}Pu ; этот суммарный пик может интерферировать с комплексом 332 кэВ от ^{241}Pu - ^{237}U . В области 332 кэВ был обнаружен эффект около 1,6 % при использовании планарного детектора и расстоянии от 3 до 4 см между образцом и детектором. Крупные образцы обычно помещают на большем расстоянии от детектора, что делает этот эффект менее значимым.

Большие образцы плутония имеют высокий выход нейтронов, так образец плутония массой 1 кг излучает $(1-2)\times 10^5$ нейтр./с. Известно, что высокая доза нейтронного излучения вызывает повреждение германиевых детекторов и снижение разрешения детекторов. Этот эффект трудно минимизировать, так как при увеличении расстояния между образцом и детектором должно быть увеличено время измерения и нейтронная доза остается практически постоянной.

8.5.5 Время измерения

Время измерения выбирается в результате изучения спектральной области, исходя из требуемой точности. В областях 40 и 100 кэВ обычно удовлетворяются временем измерения от 1000 с до 1 ч. Когда регистрируется гамма-излучение с энергией свыше 120 кэВ, для анализа массивных образцов часто требуется время измерения от 1 до 2 ч и более, хотя в некоторых случаях образцы массой меньше 10 г могут быть измерены за время менее 30 мин с погрешностью менее 1 %. Небольшие образцы (массой от 1 до 2 г и менее) могут потребовать измерения в течение всего дня. Для больших образцов простая проверка отношения $^{239}\text{Pu}/^{241}\text{Pu}$ может составлять всего несколько минут. Конкретные примеры рассматриваются в разделе 8.7.

8.6 СПЕКТРАЛЬНЫЙ АНАЛИЗ

В этом разделе обсуждаются спектральные аналитические методики, используемые для измерения изотопного состава плутония. Общее и более полное обсуждение методов, используемых для определения площади фотопиков, приведено в разделе 5.3.

8.6.1 Суммирование по рассматриваемой области

При измерении изотопного состава плутония для определения площади фотопиков часто используются методики суммирования по рассматриваемой области спектра или поканального суммирования ввиду простоты их реализации, понимания и использования. Применяются как линейная, так и ступенчатая функции сглаживания фона. Методика суммирования по рассматриваемой области спектра хорошо работает при определении площадей одиночных изолированных

пиков гамма-излучения, но менее удовлетворительна при анализе накладывающихся пиков, таких как пики спектра плутония, находящиеся в областях 125, 160, 332 и 375 кэВ. Когда методика суммирования по рассматриваемой области спектра используется для получения общей площади мультиплета, индивидуальные компоненты могут быть выделены методом интегрального вычитания, используя соседние пики и известную разницу относительных эффективностей. Такой анализ обычно приводит к потере точности.

В системы, которые используют методику суммирования по рассматриваемой области, часто включают электронные стабилизаторы спектра. Окна для определения фона должны быть выбраны так, чтобы не захватить ни одного из многочисленных слабых пиков плутония или америция-241. Это особенно важно, когда измеряется материал с высоким содержанием америция.

8.6.2 Подгонка пика

Детальное описание методики подгонки пиков приведено в разделе 5.3. Методика, разработанная Ганнинком с сотрудниками в Ливерморской лаборатории [26], широко используется как при измерении изотопов плутония, так и при обычной спектрометрии гамма-излучения. Специально для анализа множественных пиков в спектре плутония Ганник разработал программу GRPANL [27, 28]; им также сформулированы основы определения площадей пиков для программы GRPAUT [17], используемой в Маундской лаборатории.

Обе программы, GRPANL и GRPAUT, для описания фотопика используют функцию ступенчатого выравнивания фона и функцию Гаусса с экспоненциальным хвостом. Уравнение для функции фотопика выглядит следующим образом:

$$Y_i = Y_0 \left\{ \exp[\alpha(X_i - X_0)^2] + T(X_i) \right\}, \quad (8.15)$$

где Y — чистый счет в канале X_i для одиночного пика;

Y_0 — амплитуда пика;

$\alpha = -4 \ln 2 / (\text{FWHM})^2 = 1/2 \sigma^2$,

σ — стандартное отклонение для функции Гаусса;

X_0 — номер канала, соответствующего центру пика (центроида);

$T(X_i)$ — функция хвоста в канале X_i .

Функция хвоста дается выражением

$$T(X_i) = \left\{ A \exp[B(X_i - X_0)] + C \exp[\Delta(X_i - X_0)] T(X_i) \right\} \times \\ \times \left\{ 1 - \exp[0,4\alpha(X_i - X_0)^2] \right\} \delta, \quad (8.16)$$

где A и C — амплитуды короткой и длинной составляющих хвоста, соответственно;

B и D — наклоны короткой и длинной составляющих хвоста, соответственно;

$\delta = 1$ для $X_i < X_0$,

$\delta = 0$ для $X_i \geq X_0$.

Вторая составляющая часть функции хвоста плавно снижается до нуля при X_0 , как показано на рис. 8.15. Для многих задач длинным хвостом можно пренебречь ($C = 0$); но для множественных мультиплетов с мощными пиками его необходимо учитывать.

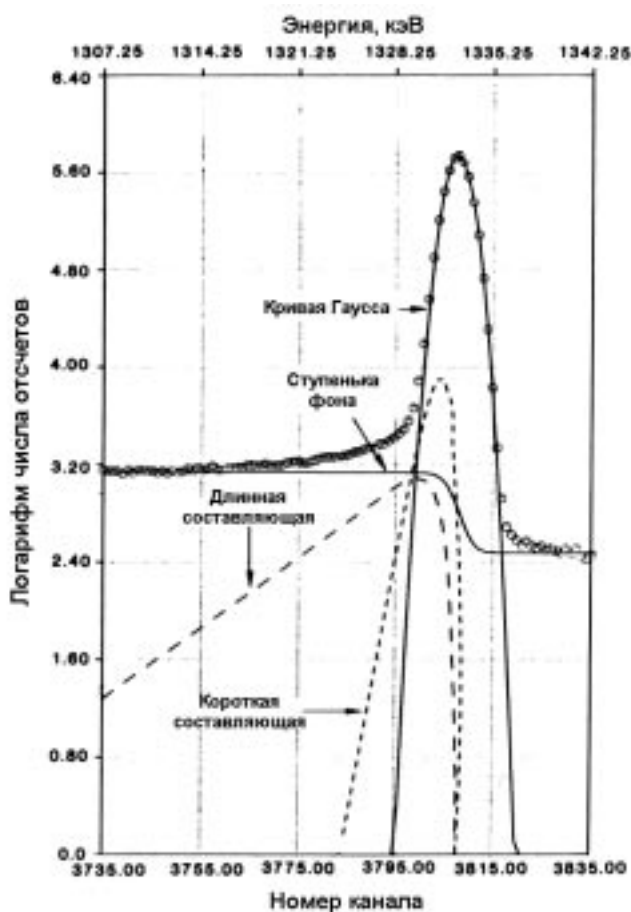


Рис. 8.15. Фотопик гамма-излучения, зарегистрированный с помощью детектора $Ge(Li)$, показывает составные части формы спектрального пика [28]: кривую Гаусса, короткую составляющую хвоста, длинную составляющую хвоста и пьедестал фона

Когда все семь параметров в уравнениях (8.15) и (8.16) рассматриваются как независимые, способ подгонки пиков занимает много времени, хотя современные компьютеры часто позволяют проводить достаточно быстрый анализ. К счастью, многие из параметров могут быть определены заранее (см. раздел 5.3). Положение пика X_0 и параметр ширины α могут быть определены с использованием двух сильных изолированных реперных пиков, таких как 148 и 208 кэВ от изотопов ^{241}Pu и ^{237}U . Поскольку отношение выходов гамма-излучения для них хорошо известно, могут быть установлены относительные интенсивности пиков для данного изотопа.

Опыт показывает [26], что наклон B короткой составляющей хвоста является постоянным для данной детекторной системы и может быть измерен на пике высокой энергии, где имеется большой хвост. Амплитуда A короткой составляющей хвоста определяется выражением

$$\ln A = k_1 + k_2 E. \quad (8.17)$$

После того как наклон B зафиксирован, амплитуда A может быть определена по двум пикам, которые использовались для определения центров и параметров ширины пиков.

Если длинная составляющая хвоста нулевая, единственным независимым параметром является амплитуда пика Y_0 , и тогда процедура подгонки пиков достаточно быстрая. В программе GRPANL остальные параметры тоже могут быть независимыми, но это увеличивает время анализа. Первой определяется ступенчатая функция фона и затем вычитается из полученного спектра. Программа GRPANL использует итерационный нелинейный метод наименьших квадратов [26, 27] для подгонки площади остаточного пика. Поскольку этот метод последовательный, время анализа зависит от числа пиков, числа независимых параметров и от типа используемого компьютера. Обычно анализ плутониевого спектра, содержащего более 50 пиков в 15 группах в области энергии от 120 до 450 кэВ занимает около 10 мин на компьютере PDP-11/23 фирмы "Диджитал Эквипмент" (Digital Equipment Corporation) или 3-4 мин на PDP-11/73. Время анализа обычно меньше времени набора данных.

Программа GRPANL может подгонять пики рентгеновского излучения, имеющие форму линий (функция Лоренца), отличающуюся от линий гамма-излучения [29]. Эта способность необходима при подгонке пиков в области энергии 100 кэВ.

8.6.3 Анализ по функции соответствия

Анализ по функции соответствия использует способы, рассмотренные в разделе 8.6.2, для расчета формы отклика детектора на определенный изотоп в определенной области энергии. Метод подгонки пиков предполагает для каждого пика в исследуемой области отдельное слагаемое в уравнении (8.15) и позволяет параметрам формы быть независимыми — одному или всем. Анализ по функции соответствия использует те же уравнения, но фиксирует все параметры формы и относительные амплитуды Y_0 всех пиков этих изотопов. Единственными независимыми параметрами в анализе по функции соответствия являются амплитуды изотопов, имеющих пики в анализируемой области энергии. Методика подгонки по функции соответствия сводится к линейному анализу методом наименьших квадратов, что позволяет быстро получить решение.

Характеристики формы пика детектора могут быть известны или определены из спектра исследуемого образца. Если параметры определяются непосредственно из каждого спектра, автоматически учитываются изменения, обусловленные различиями скоростей счета или от замены приборов. Методика, используемая для определения положения пика и параметров формы, рассматривается в разделах 5.3 и 8.6.2. Задав параметры формы и положение для всех пиков гамма-излучения, будет легче вычислить соответствующее распределение каждого изотопа в исследуемой области энергии. Анализ по функции соответствия используется для подгонки комплексов в области 100 кэВ [4, 12, 16], а также многих областей между 120 и 370 кэВ [30, 31]. Математический аппарат из работы [29] может быть использован для расчета формы линий рентгеновского излучения при анализе области энергии 100 кэВ.

8.7 ПРИБОРНОЕ ОСНАЩЕНИЕ

В этом разделе рассматриваются характеристики и показатели четырех систем измерений изотопного состава плутония, которые используются в США.

8.7.1 Компания Рокуэлл-Хэнфорд

Компания "Рокуэлл-Хэнфорд" (Rockwell-Hanford Company) использует систему измерения изотопного состава плутония совместно с калориметром для определения содержания плутония в твердых образцах оксида плутония, металла, смесей оксидов, загрязненных оксидов и скрапа (отбракованного материала) [32]. Описываемая здесь система использовалась до 1984 года; сейчас пользуются программой GRPAUT, разработанной Маундской лабораторией. Система, показанная на рис. 8.16, использует четыре планарных ОЧГ детектора площадью 300 мм^2 и толщиной 7 мм. Расстояние от образца до детектора подобрано так, что-



Рис. 8.16. Система для измерения плутония, действующая в Рокуэлл-Хэнфорде. (Фотография любезно предоставлена Гамильтоном, Рокуэлл-Хэнфорд)

бы давать скорость счета до 3000 имп./с; образец измеряют в течение 10000 с, при этом вращение образца не используется. Спектры, набранные многоканальным анализатором импульсов, анализируются на компьютере. Выбранные пики в области энергии от 120 до 400 кэВ анализируются с использованием метода изотопных отношений, описанного в работе [3]. В выражении для изотопного отношения используются только основные соотношения выходов и времен полураспада. Поправки на смещение не применяются и ^{242}Pu не учитывается.

В табл. 8.14 показана часть большого объема рабочих результатов, полученных при измерении 14 стандартных образцов, которые перекрывают область содержаний ^{240}Pu от 2 до 24 %. Измеренные содержания были использованы в табл. 8.14 для расчета мощности тепловыделения каждого образца. Определение удельной мощности и ее важность при калориметрии приведены в главе 21. Сходимость измерений удельной мощности составляет от 0,5 до 1 %, а величина смещения — того же порядка. Перед измерением удельной мощности иногда определяется изотопный состав плутония с помощью гамма-спектрометрии. Систематические отклонения результатов измерения содержания каждого изотопа частично компенсируются с помощью нормирования суммы содержаний всех изотопов на единицу.

Таблица 8.14 – Результаты, полученные системой измерения изотопов компании "Рокуэлл-Хэнфорд" при определении удельной мощности

Изотоп	Номер и состав образца						
	1 (оксид)	2 (металл)	3 (оксид)	4 (оксид)	5 (оксид)	6 (металл)	7 (металл)
	Содержание изотопа в образце, вес. %						
^{238}Pu	0,0003	0,0008	0,028	0,14	0,064	0,069	0,089
^{239}Pu	97,56	93,73	91,64	87,87	86,50	80,77	73,81
^{240}Pu	2,40	6,03	7,65	10,23	11,78	17,10	22,83
^{241}Pu	0,038	0,21	0,569	1,49	1,42	1,66	2,26
^{241}Am	0,059	0,138	0,447	1,26	0,088	1,12	2,13
	Число измерений						
	102	103	102	109	98	103	101
	Погрешность определения удельной мощности, рассчитанная по воспроизводимости измерений, относительное стандартное отклонение, %						
	1,02 %	0,72 %	0,65 %	0,55 %	0,84 %	0,62 %	0,53 %
	Смещение: Удельная мощность по неразрушающему анализу, деленная на удельную мощность из результатов масс-спектрометрии						
	0,9914	0,9921	1,003	1,008	1,016	1,0002	1,028

8.7.2 Лос-Аламосская национальная лаборатория

Плутониевая технологическая установка в Лос-Аламосе имеет систему измерений изотопного состава, которая также использует методику изотопных отношений [3, 18, 33]. Для получения спектров используется планарный детектор из особо чистого германия площадью 200 мм² и толщиной 10 мм. Расстояние от образца до детектора подобрано так, чтобы давать скорость счета более 20000 имп./с. Для использования методики суммирования в рассматриваемой области спектра применена цифровая стабилизация усиления. Для определения изотопных отношений анализируется область спектра от 120 до 400 кэВ. Все изотопные отношения измеряются относительно ²⁴¹Pu. Для старых и свежеразделенных материалов используются разные соотношения гамма-линий, приведенные в табл. 8.15. Для оценки ²⁴²Pu используется уравнение (8.12). Для материалов в широком диапазоне предшествующей реакторной истории облучения используется коэффициент поправки 90. Требуемые соотношения относительных эффективностей определяются по группе сильных чистых линий изотопов ²³⁹Pu и ²⁴¹Pu-²³⁷U, нормированных друг на друга. Для получения необходимых соотношений используются простые линейная и квадратичная интерполяция и экстраполяция. Анализ в потоке использовался для материалов с содержанием ²⁴⁰Pu от 2 до 18 % и ²⁴¹Am до 2 %. Составные части системы показаны на рис. 8.17. Два детектора могут получать данные от двух образцов одновременно. Существующая аналитическая программа может работать с четырьмя детекторами.

Таблица 8.15 – Отношения, используемые в системе измерения изотопного состава плутония в Лос-Аламосе

Изотопные отношения	Энергия гамма-излучения образцов, кэВ	
	Старые	Свежеразделенные
238/241	152,7/148,6	152,7/148,6
239/241*	345,0/332,4 203,5/208,0	129,3/148,6
240/241	160,3/164,6	160,3/148,6
Am/239*	125,3/129,3 169,6/171,3	125,3/129,3**

* Используется среднее взвешенное двух отношений

** Изотопа ²⁴¹Am обычно слишком мало для измерений

Поскольку методика суммирования по рассматриваемой области спектра не может разделить наложившиеся пики, для вычитания интерференции используются близко расположенные чистые пики. В табл. 8.16 приведены пики гамма-излучения, используемые для такого вычитания. Соотношение ²⁴¹Pu/²⁴¹Am определяется в области энергии 332 кэВ и используется для вычитания вклада ²⁴¹Am из наложившихся пиков с энергией 164,6, 208,0, 267,5 и 332,4 кэВ от ²⁴¹Pu-²³⁷U.



Рис. 8.17. Многодетекторная система для измерения изотопов плутония в Лос-Аламосе

Таблица 8.16 – Пики гамма-излучения, используемые для вычитания интерференции

Область энергии, кэВ	Интерферирующий изотоп	Пик, используемый для вычитания, кэВ
125	^{239}Pu	129,3
160	^{239}Pu	161,5
160	^{241}Pu	164,6 *
332	^{239}Pu	345,0

* Только для старых материалов

Основные постоянные для каждого уравнения изотопного соотношения легко подбираются с помощью измерения стандартных образцов материалов. Этот способ позволяет компенсировать возможные отклонения измеряемых площадей пиков, которые можно было ожидать при использовании метода поканального суммирования в областях энергии 125, 160 и 332 кэВ, где имеются тесно расположенные интерферирующие пики. Стандартные образцы включают широкий ряд образцов из оксида и металлического плутония с массой в диапазоне от менее чем 0,5 г до приблизительно 1 кг.

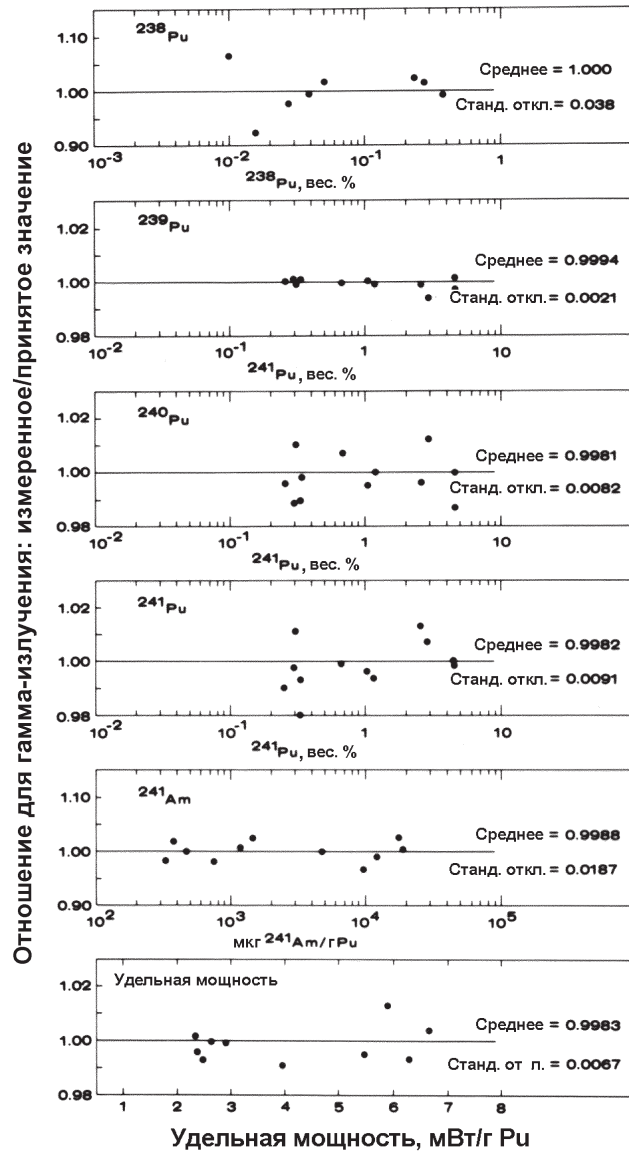


Рис. 8.18. Погрешность Лос-Аламосской системы для измерения изотопов плутония для широкой области типов материалов и изотопного состава

На рис. 8.18 показана средняя погрешность Лос-Аламосской измерительной системы. Изотопы ^{239}Pu , ^{240}Pu и ^{241}Pu измеряются с погрешностью лучше чем 0,2 %, а изотопы ^{238}Pu и ^{241}Am — несколько процентов. Эти значения ограничены точностью стандартных образцов. Сходимость измерений показана на рис. 8.19 в виде функции времени измерения. На рис. 8.20 приведена сходимость измерений удельной мощности, которая используется для определения общей массы плутония методом калориметрии. Удельная мощность может быть определена с погрешностью лучше чем 1 % при 30-минутном измерении и около 0,5 % при 2-часовом измерении.

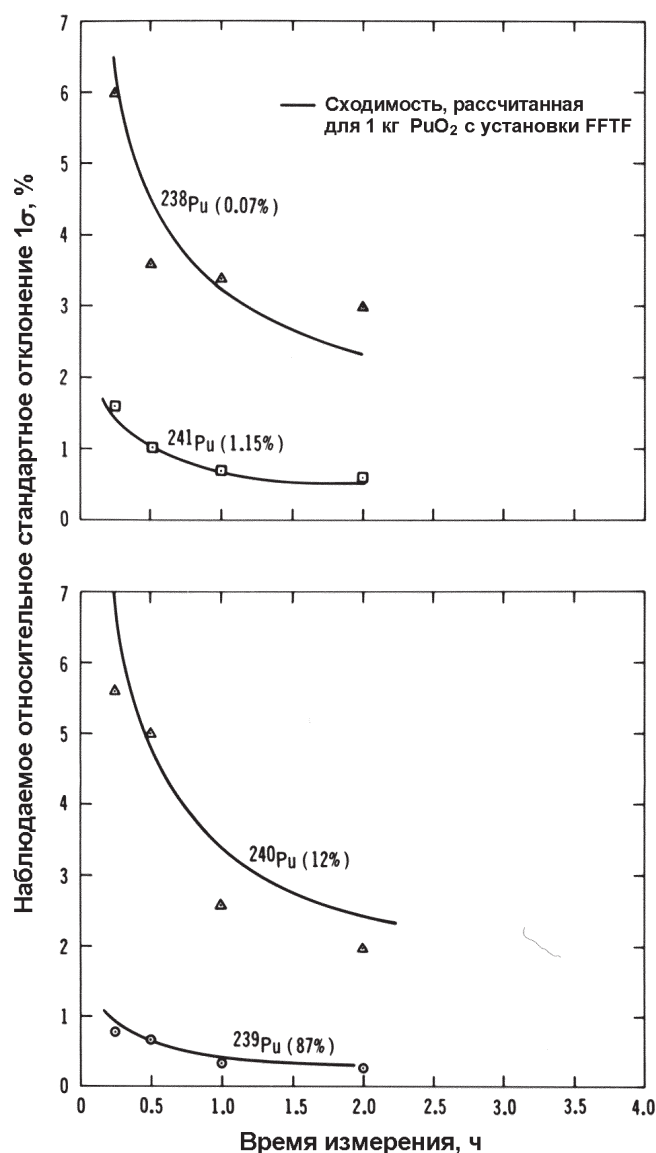


Рис. 8.19. Сходимость Лос-Аламосской системы для измерения изотопов плутония, определенная по 30 измерениям образца PuO_2 массой 1 кг (^{240}Pu — 12 %). Сплошная линия — расчетная погрешность по статистике отсчетов

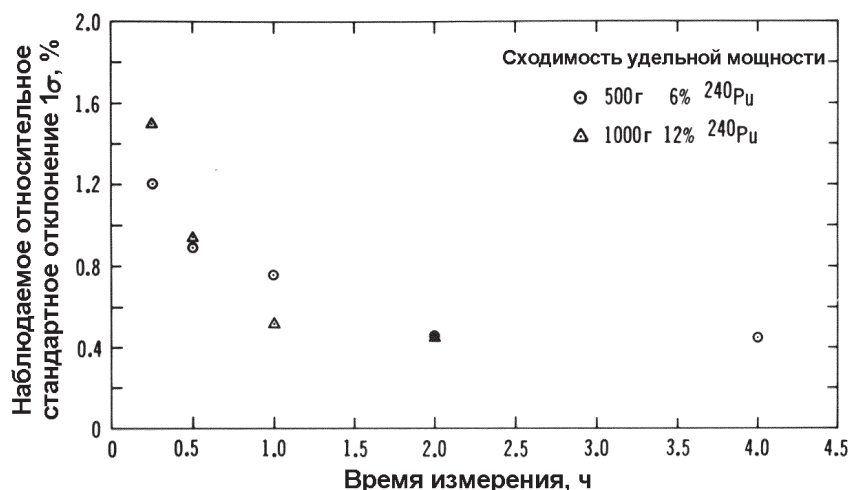


Рис. 8.20. Сходимость Лос-Аламосской системы для измерения изотопов плутония при определении удельной мощности, используемой для интерпретации калориметрических измерений. Сходимость рассчитана по 30 измерениям. Кружки относятся к образцу металлического плутония массой 500 г (²⁴⁰Pu — 6 %); треугольники относятся к образцу PuO₂ массой 1 кг (²⁴⁰Pu — 12 %)

8.7.3 Установка Маундской лаборатории

На установке Маундской лаборатории исследователи выполняют измерения изотопного состава плутония для калориметрических измерений, выполняемых в то же время. Используются программы подгонки пиков GRPANL и GRPAUT, описанные в разделе 8.6.2. Длинный хвост не используется. Наклон короткого хвоста В измеряется при начальной градуировке детектора. Параметры амплитуды пиков Y_0 и ширины α являются независимыми. В некоторых случаях независимым параметром является амплитуда короткого хвоста. Проводится подгонка более 50 пиков в области энергии от 120 до 450 кэВ; кроме того, анализируется область 640 кэВ. В табл. 8.17 приведены соотношения, используемые программой GRPAUT. График относительной эффективности определяется по пикам ²³⁹Pu, ²⁴¹Pu-²³⁷U и ²⁴¹Am. Для подгонки измеренных точек к сплошной кривой используется взвешенный метод наименьших квадратов (см. уравнение (8.18)). Для оценки содержания ²⁴²Pu используется уравнение (8.13):

$$\ln \epsilon_i = A_0 + \sum_{j=1}^2 A_j / E_i^j + \sum_{j=1}^3 A_{j+2} (\ln E_i)^j + A_6 \delta_6 + A_7 \delta_7, \quad (8.18)$$

где ϵ_i — относительная эффективность;

E_i — энергия гамма-излучения;

A_6, A_7 — константы нормировки пиков ²⁴¹Pu-²³⁷U и ²⁴¹Am на ²³⁹Pu;

$\delta_6, \delta_7 = 1$ для ²⁴¹Pu и ²⁴¹Am, $= 0$ для других изотопов.

Таблица 8.17 – Отношения пиков гамма-излучения, рассчитываемые программой GRPAUT

Отношение	Энергия, кэВ
241/239	208/203 *
241/239	148/144
241/239	165/161
241/239	148/129 *
238/239	153/144
238/241	153/148 *
240/239	160/161
240/241	160/165
240/241	160/148 *
Am/239	125/129
Am/239	335/345 *
Am/239	369/375 *
Am/239	662/646
Am/239	772/718

* Отношение используется для расчета содержания изотопов. В соответствующих случаях применяются взвешенные средние.

Программа GRPAUT используется в нескольких случаях. В работе [20] описан двухдетекторный метод, в котором используется планарный детектор в области энергии гамма-излучения от 120 до 300 кэВ и коаксиальный детектор в области энергии от 300 до 700 кэВ. Коаксиальный детектор применяется для измерения гамма-пиков 642,48 кэВ от ^{240}Pu и 662,42 кэВ от ^{241}Am . Детектор имеет тяжелый фильтр для поглощения гамма-излучения с энергией ниже 100 кэВ. При времени измерения 50 000 с сходимость составляет ~2 % как для отношения 160/148 $^{240}\text{Pu}/^{241}\text{Pu}$, так и для отношения 642/646 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$. Для больших образцов отношение 662/646 $^{241}\text{Am}/^{239}\text{Pu}$ значительно более точное, чем отношение 125/129 для этих нуклидов.

На рис. 8.21 показана созданная в Маундской лаборатории система для одно-временного калориметрического и гамма-спектрометрического анализа плутония [34, 35]. Эта система снижает радиационное облучение оператора при загрузке образца за счет уменьшения ручных операций, а также снижает погрешность записи данных измерений. В табл. 8.18 приведены результаты измерений, полученные с помощью передвижной аналитической системы на трех ядерных установках. Измеряемые образцы содержали от нескольких сотен граммов до 2 кг оксида или металла плутония. Большинство образцов имели номинальное содержание ^{240}Pu около 6 %. Время измерения обычно составляло от 10 000 до 50 000 с. Общая масса плутония измерялась с погрешностью менее 1 % при сходимости от 1 до 3 %.



Рис. 8.21. Передвижной калориметр с возможностью одновременного проведения калориметрии/гамма спектрометрии. (Фотография любезно предоставлена Флейшнером, Маундская лаборатория)

Таблица 8.18 – Одновременный анализ с помощью передвижной установки из калориметра и гамма-спектрометрической системы [35]

Площадка	Номер образца	Среднее отношение измеренного количества общего плутония к принятому	Сходимость отношения, %
1	18	0,997	1,7
2	20	1,007	0,7
3	13	1,00	3,0

8.7.4 Ливерморская национальная лаборатория им. Лоуренса

Анализ методом функции соответствия часто использует Ганнинк с сотрудниками в Ливерморской национальной лаборатории им. Лоуренса. В начале 1970-х годов они установили аппаратуру с использованием этого метода на заводе в Саванна-Ривер для измерений растворов низкой концентрации плутония низкого выгорания. В аппаратуре для измерения жидких образцов объемом 10 мл используется планарный германиевый детектор с высоким разрешением. Для образцов требуется только небольшая поправка на ослабление из-за низкой концентрации плутония и небольшой толщины (1 см). Поскольку америций был удален из раствора незадолго перед измерением, было возможно проводить анализ в области энергии 40 кэВ. Система анализировала как область энергии 40 кэВ, так и 100 кэВ; эти области дают более высокую точность измерений, чем достигается при использовании областей энергии выше 120 кэВ. При времени измерения только 10 мин точность измерения не более чем в 2 раза превышает достигаемую с помощью масс-спектрометра. В табл. 8.19 приведены некоторые результаты, полученные с помощью этой системы.

Таблица 8.19 – Характеристики системы для анализа изотопного состава плутония на заводе в Саванна-Ривер (анализ методом функции соответствия) [4]

Изотоп Pu	Содержание, %	Среднее смещение, %	Сходимость, %
1. Свежевыделенный раствор, время измерения 10 мин, концентрация плутония 3 г/л			
238	0,008	5,6	4,7
239	93,46	0,048	0,049
240	5,88	0,75	0,72
241	0,65	0,96	1,9
2. Старый раствор, время измерения 60 мин, концентрация плутония 4 г/л			
238	0,018	7,6	5,7
239	90,92	0,14	0,09
240	8,40	1,6	0,94
241	0,661	0,64	0,61
Am	- - -	0,08	0,26
Общий Pu	5,4 г/л	0,46	0,35

Ганнинк разработал аналогичную аппаратуру для измерения растворов ядерного топлива высокого выгорания (около 20 % ^{240}Pu) большой концентрации (около 250 г Pu/л) на заводе по переработке ядерного топлива [12]. Аппаратура установлена в Японии на заводе по переработке топлива в Токай-Мура. Когда измеряется свежевыделенный раствор, анализ проводится в области энергии 40 кэВ. Кроме того, для измерения ^{241}Pu используется пик гамма-излучения 148 кэВ и пик 94 кэВ рентгеновской $K_{\alpha 2}$ -линии урана, которая имеет вклад от всех изотопов плутония. Для измерения ^{239}Pu используется пик гамма-излучения

129 кэВ. Площади пиков определяются с помощью простой методики суммирования в рассматриваемой области энергии. Интерферирующие пики вычитаются поканально перед суммированием. Для старых растворов в области энергии 100 кэВ используется метод функции соответствия. Для проведения градуировки по энергии и определения параметров формы пика используются гамма-пики 208 и 59 кэВ. Перед подгонкой функции соответствия в области энергии 100 кэВ приходится разделять большое количество интерферирующих пиков. Для измерения абсолютной концентрации каждого изотопа аппаратура градуируется с помощью стандартных образцов растворов. Для оценки содержания ^{242}Pu используется уравнение (8.12).

Показанная на рис. 8.22 очень тонкая кювета (около 1 мм толщиной) позволяет детектору наблюдать образец объемом 0,25 мл. Кювета установлена на торце детектора, как показано на рис. 8.23, и плутониевый раствор закачивается в кювету из перчаточного бокса. Свежие растворы измеряются от 15 до 30 мин, а старые — от 30 мин до 1 ч. В табл. 8.20 представлены результаты измерений как свежих, так и старых технологических растворов в Токай-Мура.

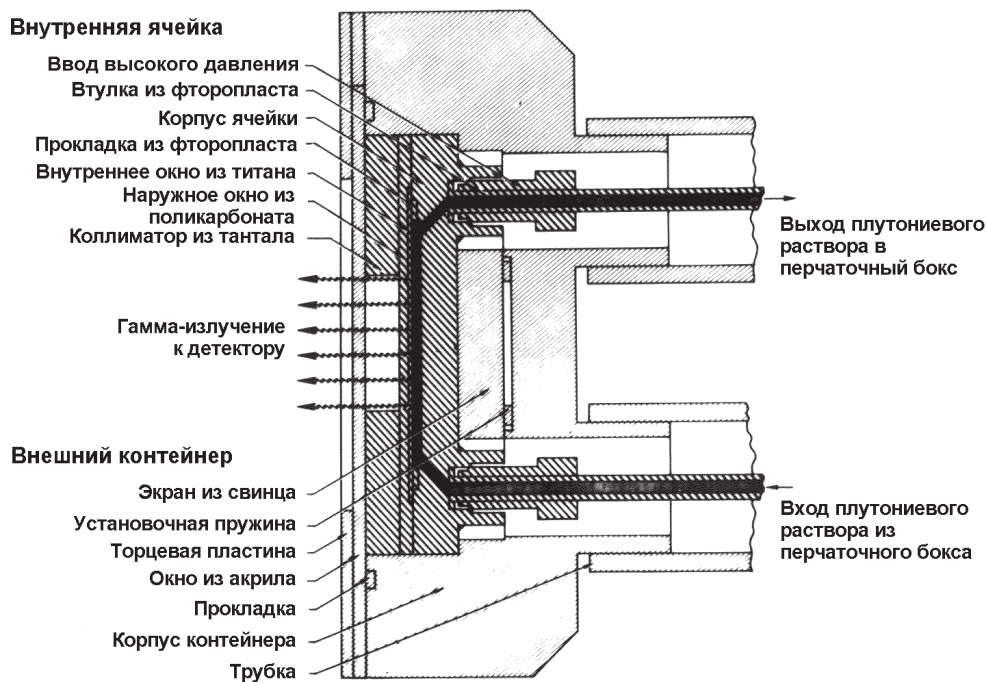


Рис. 8.22. Кювета для образца, используемая в системе для анализа изотопного состава плутония, установленной на заводе по переработке ядерного топлива в Токай-Мура, Япония [12]. Кювета пригнана к торцу детектора из особо чистого германия. Плутониевый раствор закачивается в кювету из перчаточного бокса в аналитической лаборатории. (Фотография любезно предоставлена Ганнинком, ЛЛНЛ)



Рис. 8.23. Детектор из особо чистого германия и ячейка для образца системы для анализа изотопного состава плутония, установленной на заводе по переработке ядерного топлива в Токай-Мура, Япония [12]. (Фотография любезно предоставлена Ганнинком, ЛЛНЛ)

Таблица 8.20 – Характеристики системы для анализа изотопного состава плутония на заводе в Токай-Мура (94 образца, концентрация плутония от 130 до 270 г/л) [12]

Изотоп Pu	Содержание, %	Смещение, %	Сходимость, %
238	0,5 – 1,0	0,1 – 0,8	0,4 – 0,7
239	60 – 75	0,01 – 0,3	0,08 – 0,4
240	17 – 23	0,02 – 0,4	0,2 – 1,3
241	5 – 11	0,02 – 0,8	0,2 – 0,8

Методика функции соответствия также была применена Рютером и Кэмпом [30, 31] для твердых образцов с использованием гамма-излучения в области энергии от 120 до 450 кэВ. Они создали портативную аппаратуру для инспекторов по гарантиям МАГАТЭ.

Другая система описана Ганнинком в работе [36]; она позволяет использовать все данные, имеющиеся в спектре, применяя два детектора (высокой и низкой энергии) и анализируя данные с помощью методик как функции соответствия, так и суммирования в рассматриваемой энергетической области. Эта система может достигать большей точности, чем другие системы при измерении про-

извольных образцов, поскольку ее функция соответствия анализирует область энергии 100 кэВ.

8.7.5. Обзор погрешностей измерений

Для всех рассмотренных методик на погрешности измерений в большой степени влияет анализируемый участок спектра. Наиболее высокая точность получается, когда измеряются области низких энергий гамма-излучения, которые имеют высокую скорость испускания гамма-квантов. В табл. 8.21 представлены сходимости измерений, достижимые для различных областей энергии гамма-излучения. Погрешность измерения обычно соответствует сходимости.

Таблица 8.21 – Типовые сходимости измерения, %

Область энергии, кэВ	Время измерения	Изотоп					Удельная мощность
		238	239	240	241	Am	
40	10 – 30 мин	0,3-5	0,05-0,5	0,2-1,0	0,2-1,0	---	---
100	30 – 60 мин	0,3-5	0,05-0,5	0,2-1,0	0,2-0,8	0,1-1,0	0,1-1,0
>120	1 – 4 ч *	>1-10	0,1-0,5	1-5	0,3-0,8	0,2-10	0,3-2

* Для систем с высокой скоростью счета эти сходимости могут быть реализованы за время менее 30 мин.

ЛИТЕРАТУРА

1. Francis X. Haas and Walter Strohm, "Gamma-Ray Spectrometry for Calorimetric Assay of Plutonium Fuels," *IEEE Transactions on Nuclear Science* NS-22, 734 (1975).
2. T. Dragnev and K. Scharf, "Nondestructive Gamma Spectrometry Measurement of $^{239}\text{Pu}/^{240}\text{Pu}$ and $\text{Pu}/^{240}\text{Pu}$ Ratios," *International Journal of Applied Radiation and Isotopes* 26, 125 (1975).
3. J. L. Parker and T. D. Reilly, "Plutonium Isotopic Determination by Gamma-Ray Spectroscopy," in "Nuclear Analysis Research and Development Program Status Report, January-April 1974," G. Robert Keepin, Ed., Los Alamos Scientific Laboratory report LA-5675-PR (1974).
4. R. Gunnink, J. B. Niday, and P. D. Siemens, "A System for Plutonium Analysis by Gamma-Ray Spectrometry. Part 1: Techniques for Analysis of Solutions," Lawrence Livermore Laboratory report UCRL-51577, Part I (April 1974).
5. R. Gunnink, "A Simulation Study of Plutonium Gamma-Ray Groupings for Isotopic Ratio Determinations," Lawrence Livermore Laboratory report UCRL-51605 (June 1974).
6. "Determination of Plutonium Isotopic Composition by Gamma-Ray Spectrometry," ASTM Standard Test Method C1030-84, in *1985 Annual Book of ASTM Standards* (American Society for Testing and Materials, Philadelphia, 1985), Section 12, pp. 788-796.

7. R. D. Evans, *The Atomic Nucleus* (McGraw Hill, New York, 1955), p. 484.
8. R. Gunnink, "Use of Isotope Correlation Techniques to Determine ^{242}Pu Abundance," *Nuclear Materials Management* 9 (2), 83-93 (1980).
9. R. Gunnink, J. E. Evans, and A. L. Prindle, "A Reevaluation of the Gamma-Ray Energies and Absolute Branching Intensities of ^{237}U , $^{238,239,240,241}\text{Pu}$, and ^{241}Am ," Lawrence Livermore Laboratory report UCRL-52139 (October 1976).
10. J. F. Lemming and D. A. Rakel, "Guide to Plutonium Isotopic Measurements Using Gamma-Ray Spectrometry," Mound Facility report MLM-2981 (August 1982).
11. P. A. Russo, S.-T. Hsue, J. K. Sprinkle, Jr., S. S. Johnson, Y. Asakura, I. Kando, J. Masui, and K. Shoji, "In-Plant Measurements of Gamma-Ray Transmissions for Precise K-Edge and Passive Assay of Plutonium Concentration and Isotopic Fractions in Product Solutions," Los Alamos National Laboratory report LA-9440-MS (PNCT 841-82-10) (1982).
12. R. Gunnink, A. L. Prindle, Y. Asakura, J. Masui, N. Ishiguro, A. Kawasaki, and S. Kataoka, "Evaluation of TASTEX Task H: Measurement of Plutonium Isotopic Abundances by Gamma-Ray Spectrometry," Lawrence Livermore National Laboratory report UCRL-52950 (October 1981).
13. H. Umezawa, T. Suzuki, and S. Ichikawa, "Gamma-Ray Spectrometric Determination of Isotopic Ratios of Plutonium," *Journal of Nuclear Science and Technology* 13,327-332 (1976).
14. J. Bubemak, "Calibration and Use of a High-Resolution Low-Energy Photon Detector for Measuring Plutonium Isotopic Abundances," *Analytica Chimica Acta* 96,279-284 (1978).
15. J. K. Li, T. E. Sampson, and S. Johnson, "Plutonium Isotopic Measurement for Small Product Samples," Proceedings of Fifth Annual ESARDA Symposium on Safeguards and Nuclear Material Management, Versailles, France, April 19-21, 1983, paper 4.23.
16. R. Gunnink, "Gamma Spectrometric Methods for Measuring Plutonium," Proceedings of the American Nuclear Society National Topical Meeting on Analytical Methods for Safeguards and Accountability Measurements of Special Nuclear Material, Williamsburg, Virginia, May 15-17, 1978.
17. J. G. Fleissner, "GRPAUT: A Program for Pu Isotopic Analysis (A User's Guide)," Mound Facility report MLM-2799 (January 1981).
18. J. E. Sampson, S. Hsue, J. L. Parker, S. S. Johnson, and D. F. Bowersox, "The Determination of Plutonium Isotopic Composition by Gamma-Ray Spectroscopy," *Nuclear Instruments and Methods* 193, 177-183 (1982).
19. H. Ottmar, "Results from an Interlaboratory Exercise on the Determination of Plutonium Isotopic Ratios by Gamma Spectrometry," Kernforschungszentrum Karlsruhe report KfK 3149 (ESARDA 1/81) (July 1981).
20. J. G. Fleissner, J. F. Lemming, and J. Y. Jarvis, "Study of a Two-Detector Method for Measuring Plutonium Isotopes," in *Measurement Technology for Safeguards and Materials Control* Proceedings of American Nuclear Society Topical Meeting, Kiawah Island, South Carolina, November 26-30, 1979, pp. 555-567.

21. J. G. Fleissner, "Nondestructive Assay of Plutonium in Isotopically Heterogeneous Salt Residues," Proceedings of Conference on Safeguards Technology, Hilton Head Island, Department of Energy publication CONF-831106 (1983).
22. H. Umezawa, H. Okashita, and S. Matsuura, "Studies on Correlation Among Heavy Isotopes in Irradiated Nuclear Fuels," Symposium on Isotopic Correlation and Its Application to the Nuclear Fuel Cycle held by ESARDA, Stresa, Italy, May 1978.
23. K. Kandiah and G. White, "Status at Harwell of Opto-Electronic and Time Variant Signal Processing for High Performance Nuclear Spectrometry with Semiconductor Detectors," *IEEE Transactions on Nuclear Science* NS-28 (1), 1-8 (1981).
24. F. J. G. Rogers, "The Use of a Microcomputer with In-Held Nondestructive Assay Instruments," International Symposium on Recent Advances in Nuclear Materials Safeguards, International Atomic Energy Agency, Vienna, Austria, November 8-12, 1982.
25. J. G. Fleissner, "A High Count Rate Gamma-Ray Spectrometer for Pu Isotopic Measurements," Proceedings of Institute of Nuclear Materials Management 26th Annual Meeting, Albuquerque, New Mexico (1985).
26. R. Gunnink and J. B. Niday, "Computerized Quantitative Analysis by Gamma-Ray Spectrometry. Vol. I. Description of the GAMANAL Program," Lawrence Livermore Laboratory report UCRL-51061, Vol. I (March 1972).
27. R. Gunnink and W. D. Ruhter, "GRPNL: A Program for Fitting Complex Peak Groupings for Gamma and X-Ray Energies and Intensities," Lawrence Livermore Laboratory report UCRL-52917 (January 1980).
28. J. G. Fleissner and R. Gunnink, "GRPNL2: An Automated Program for Fitting Gamma and X-Ray Peak Multiplets," Monsanto Research Corporation Mound Facility report MLM-2807 (March 1981).
29. R. Gunnink, "An Algorithm for Fitting Lorentzian-Broadened K-Series X-Ray Peaks of the Heavy Elements," *Nuclear Instruments and Methods* 143, 145 (1977).
30. W. D. Ruhter and D. C. Camp, "A Portable Computer to Reduce Gamma-Ray Spectra for Plutonium Isotopic Ratios," Lawrence Livermore Laboratory report UCRL-53145 (May 1981).
31. W. D. Ruhter, "A Portable Microcomputer for the Analysis of Plutonium Gamma-Ray Spectra," Lawrence Livermore National Laboratory report UCRL-53506, Vols. I and II (May 1984).
32. R. A. Hamilton, Rockwell-Hanford letter R83-0763, to T. E. Sampson (February 24, 1983).
33. S. -T. Hsue, T. E. Sampson, J. L. Parker, S. S. Johnson, and D. F. Bowersox, "Plutonium Isotopic Composition by Gamma-Ray Spectroscopy," Los Alamos Scientific Laboratory report LA-8603-MS (November 1980).
34. D. A. Rakel, "Gamma-Ray Measurements for Simultaneous Calorimetric Assay," *Nuclear Material Management* X, 467 (1981).
35. D. A. Rakel, J. F. Lemming, W. W. Rodenburg, M. F. Duff, and J. Y. Jarvis, "Results of Field Tests of a Transportable Calorimeter Assay System," 3rd Annual

ESARDA Symposium on Safeguards and Nuclear Materials Management, Karlsruhe, Federal Republic of Germany, May 6-8, 1981, p. 73.

- 36.** R. Gunnink, "Plutonium Isotopic Analysis of Nondescript Samples by Gamma-Ray Spectrometry," Conf. on Analytical Chemistry in Energy Technology, Gatlinburg, Tennessee, October 6-8, 1981.

Глава 9

Плотнометрия

*Хэйстингс А. Смит, мл. и Филлис А. Руссо
(Переводчик Н. В. Мошкина)*

9.1 ВВЕДЕНИЕ

Термин “плотнометрия” относится к измерению плотности материала путем определения степени ослабления этим материалом электромагнитного излучения заданной энергии. В главе 2 подробно описано взаимодействие электромагнитного излучения (в частности, рентгеновских и гамма-квантов) с веществом. Поскольку электромагнитное излучение взаимодействует с атомными электронами, характеристики плотности являются специфическими для элементов, а не изотопов. Во время измерений плотности происходят два явления: первое — часть энергии падающего излучения поглощается, второе — ионизированные атомы испускают характеристическое рентгеновское излучение при возвращении в стабильные основные атомные состояния. Последний процесс, известный как рентгеновская флюоресценция, является мощным методом элементного анализа (см. главу 10 с подробным изложением методики рентгенофлюоресцентного анализа (РФА)). В некоторых случаях измерение коэффициента пропускания гамма-излучения может предоставить информацию не только об объемной плотности образца, но также по его составу. Поскольку поглощение фотонов с низкой энергией (в основном путем фотоэлектрического эффекта) есть возрастающая функция атомных номеров Z элементов в образце, оно является характеристикой, на измерении которой может быть основан анализ.

В этой главе описываются различные методики плотнометрии, включая измерение поглощения фотонов при одном или нескольких значениях энергии и измерение дифференциального ослабления фотонов вдоль краев поглощения. Кроме того, обсуждаются прикладные задачи, использующие эти методики, и описываются процедуры измерений с представлением типичных результатов работы.

Все измерения плотности, обсуждаемые в этой главе, основаны на определении степени пропускания электромагнитного излучения данной энергии материалом образца. Математической основой для измерения является характеризующая поглощение экспоненциальная связь между интенсивностью I_0 фотонного излучения с энергией E , падающего на материал, и интенсивностью I излучения, прошедшего толщину x материала:

$$I = I_0 \exp(-\mu\rho x), \quad (9.1)$$

где ρ — массовая плотность материала;

μ — массовый коэффициент ослабления, который оценивается при энергии фотона E .

Измеряемыми величинами являются интенсивности падающего и прошедшего излучений. Их отношение I/I_0 называется коэффициентом пропускания T материала для рассматриваемой энергии излучения. Если любые две из трех величин в выражении для экспоненты известны из других данных, третья величина может быть определена измерением коэффициента пропускания. Большим преимуществом процедуры, с помощью которой измеряется коэффициент пропускания фотонов, является то, что данные обрабатываются как отношение двух величин, измеренных в одинаковых условиях, тем самым устраняя множество мешающих систематических эффектов, которые часто усложняют измерение абсолютной интенсивности фотонов.

Источником измеряемого электромагнитного излучения может служить искусственный источник рентгеновских квантов, испускающий фотоны с непрерывным энергетическим спектром, или естественный источник гамма-излучения, который испускает гамма-кванты с дискретными энергиями. Материал образца помещается между фотонным источником и фотонным детектором (см. рис. 9.1). Коэффициент пропускания образца определяется путем измерения интенсивности фотонов источника как при наличии (I), так и в отсутствие (I_0) материала образца.

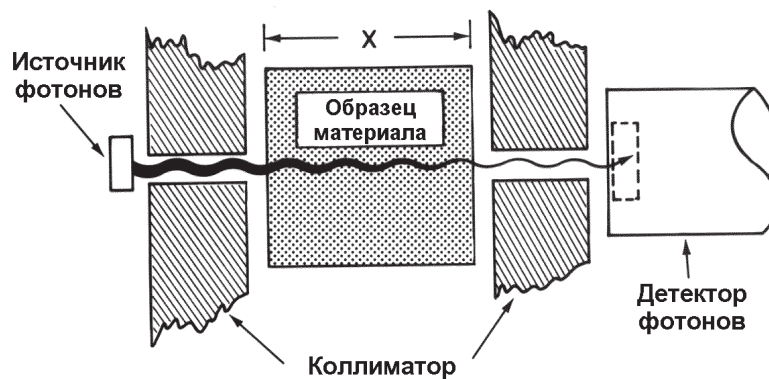


Рис. 9.1. Основные составляющие измерения плотности

9.2 МОНОЭНЕРГЕТИЧЕСКАЯ ПЛОТНОМЕТРИЯ

9.2.1 Измерение концентрации и толщины

Если образец состоит из одного типа материала или смеси материалов, состав которых тщательно контролируется, кроме одного из компонентов, то коэффициент пропускания образца при одной энергии гамма-излучения может быть использован для измерения концентрации (плотности ρ) изменяющегося компонента. Обычно используются источники гамма-излучения дискретной энергии. Например, рассмотрим двухкомпонентную систему — раствор урана в азотной кислоте, компоненты которой имеют соответствующие плотности ρ и ρ_0 и массовые коэффициенты ослабления μ и μ_0 при данной энергии гамма-излучения. Натуральный

логарифм коэффициента пропускания фотонов при этой энергии дается выражением

$$\ln T = -(\mu\rho + \mu_0\rho_0)x. \quad (9.2)$$

Для неизвестной концентрации (плотности ρ) имеем

$$\rho = -\left(\frac{1}{\mu x}\right) \ln T - \frac{\mu_0\rho_0}{\mu}. \quad (9.3)$$

Уравнение (9.3) может применяться для измерения концентрации неизвестного количества вещества ρ при известной, тщательно контролируемой концентрации растворителя ρ_0 .

При измерении концентрации ядерных материалов (урана и плутония) в растворах крайне необходимо, чтобы коэффициенты массового ослабления для растворителя μ_0 и ядерного материала μ были определены корректно, и чтобы состав растворителя (ρ_0) был хорошо известен и постоянен от образца к образцу. Образцы растворов должны быть защищены от загрязнений, поскольку они вызвали бы изменения в эффективных значениях ρ_0 и μ_0 .

Моноэнергетическое измерение коэффициента пропускания T может также применяться для определения толщины материалов известного и тщательно контролируемого состава. Непрерывное измерение интенсивности прошедших фотонов одной энергии через металлы и другие твердые вещества при постоянной геометрии измерения является непосредственной мерой толщины этих материалов. Такая информация является полезной для оперативного контроля некоторых промышленных технологических процессов.

9.2.2 Точность измерений

Рассмотрим случай моноэнергетического измерения концентрации, при котором отсутствуют значительные флуктуации в составе растворителя. Точность измерения неизвестной величины ρ определяется статистической дисперсией коэффициента пропускания T . Относительная погрешность измерения плотности получается путем дифференцирования уравнения (9.3):

$$\frac{\sigma(\rho)}{\rho} = \left(\frac{1}{\ln T}\right) \left[\frac{\sigma(T)}{T}\right]. \quad (9.4)$$

Это выражение показывает, что существует диапазон значений коэффициента пропускания, вне которого относительная погрешность измерения плотности больше, чем относительная погрешность измерения коэффициента пропускания (наилучший режим точности: $|\ln T| > 1$ или $T < 0,37$). Для больших значений коэффициента пропускания относительная погрешность определения плотности больше, чем относительная погрешность определения коэффициента пропускания, и, соответственно, ухудшается измерение. Отметим, что когда T приближается к 1, выражение для относительной погрешности расходится из-за коэффициента $1/(\ln T)$. Поскольку материал образца не поглощает падающее излучение, то аналитический сигнал отсутствует.

Диапазон оптимальных значений коэффициента пропускания может также быть отнесен к характеристической концентрации $\rho_c = 1/\mu x$. Когда $\ln T > 1$, $\rho > \rho_c$,

то измерение проходит в подходящем режиме точности; но когда $\rho < \rho_c$ — аналитический сигнал слишком мал и точность является наихудшей. Путем определения наилучшего рабочего диапазона с точки зрения этой характеристической концентрации, можно выбрать приемлемую толщину образца x , которая задает собственные свойства материала образца (μ), подлежащие измерению, и ожидаемый диапазон концентраций.

Вследствие симметрии ρ и x в уравнениях (9.1) — (9.3), уравнение (9.4) выражает также относительную погрешность измерения толщины. При измерении толщины точность может быть повышена путем разумного выбора энергии фотонов.

Существуют ограничения на то, насколько высоким или низким должен быть коэффициент пропускания образца для оптимальной точности измерений. Поскольку $T = I/I_0$, а интенсивности представляют собой статистически изменяющиеся величины, уравнение (9.4) можно переписать в виде

$$\frac{\sigma(\rho)}{\rho} = \frac{1}{\ln T} \left(\frac{T+1}{I_0 T} \right)^{1/2}. \quad (9.5)$$

График этого соотношения на рис. 9.2 показывает ухудшение точности измерения при высокой и низкой концентрациях. В согласии с определением ρ_c оптимальный диапазон T находится ниже точки, в которой $\ln T = 1$. Диапазон значений T , выше которого величина $\sigma(\rho)/\rho$ находится близко к минимуму, определяет характеристики конструкции прибора (толщину образца, диапазон измеряемых концентраций и энергию фотонов). Эти характеристики также важны в более сложных измерениях плотности, описываемых в разделах 9.3 и 9.4.

Отметим, что вышеприведенное обсуждение связано с погрешностью измерений, определяемой только счетной статистикой. В общем случае дополнительные флуктуации результатов измерений могут вызвать и другие факторы, вклю-

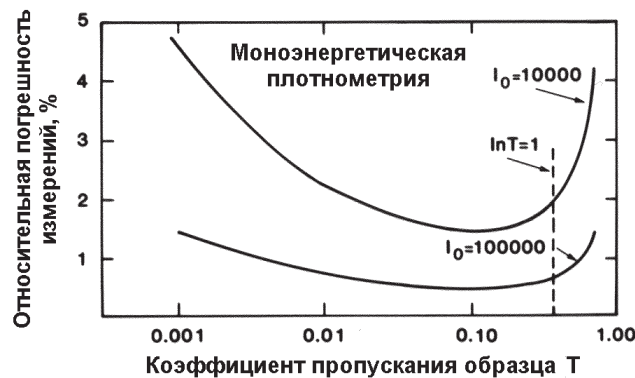


Рис. 9.2. Зависимость погрешности измерения методом моноэнергетической плотнометрии от коэффициента пропускания образца для двух значений полного числа отсчетов падающих фотонов (из уравнения (9.5)). Оптимальным коэффициентом пропускания является коэффициент, который дает наименьшую относительную погрешность измерения. Он соответствует концентрации, большей, чем характеристическая концентрация ρ_c , при которой $\ln T = 1$. (Обратите внимание, что горизонтальная ось имеет логарифмический масштаб)

чая изменения в материале матрицы (растворителя) и возможные инструментальные флуктуации. В результате, погрешность средств измерения должна определяться путем выполнения дополнительных (повторных) измерений известных стандартных образцов, представляющих полный диапазон свойств образца и растворителя.

9.3 МНОГОЭНЕРГЕТИЧЕСКАЯ ПЛОТНОМЕТРИЯ

Измерение коэффициента пропускания фотонов при одной энергии позволяет проводить анализ только одного вещества или только одного компонента смеси; концентрация других компонентов должна оставаться постоянной. Измерение коэффициента пропускания фотонов при двух значениях энергии позволяет проводить анализ двух компонентов смеси. Такое комплексное измерение будет тем успешнее, чем больше отличаются друг от друга коэффициенты ослабления двух компонентов. Анализ концентрации элемента с высоким Z в растворителе с низким Z является превосходным примером двухэнергетического плотнометрического измерения.

9.3.1 Анализ двухэнергетического случая

Рассмотрим смесь двух компонентов с неизвестными концентрациями ρ_1 и ρ_2 . Пусть массовый коэффициент ослабления i -го компонента, измеренный при j -й энергии, дается выражением

$$\mu_i^j = \mu_i(E_j), \quad (9.6)$$

и определим коэффициент пропускания при j -й энергии как

$$T_j = \exp[-(\mu_1^j \rho_1 + \mu_2^j \rho_2)x]. \quad (9.7)$$

Измерение двух коэффициентов пропускания дает два уравнения для двух неизвестных концентраций:

$$\begin{aligned} (-\ln T_1) / x &= M_1 = \mu_1^1 \rho_1 + \mu_2^1 \rho_2, \\ (-\ln T_2) / x &= M_2 = \mu_1^2 \rho_1 + \mu_2^2 \rho_2. \end{aligned} \quad (9.8)$$

Приписывая измеренное поглощение двум компонентам образца, мы фактически определяем значение интенсивности падающего излучения, которая является интенсивностью, прошедшей пустой контейнер для образца. Решениями указанных выше уравнений являются:

$$\begin{aligned} \rho_1 &= (M_1 \mu_2^2 - M_2 \mu_2^1) / D, \\ \rho_2 &= (M_2 \mu_1^1 - M_1 \mu_1^2) / D, \\ D &= \mu_1^1 \mu_2^2 - \mu_2^1 \mu_1^2. \end{aligned} \quad (9.9)$$

Чтобы уравнения (9.8) имели решение, знаменатель D в выражениях (9.9) должен быть ненулевым. Это условие фактически обеспечивается, если массовые коэффициенты ослабления для двух компонентов имеют существенно различающиеся энергетические зависимости. Физически это означает, что анализ является выполнимым, если компоненты могут отличаться друг от друга по поглощающим свойствам. Этот критерий предполагает в дальнейшем два возможных варианта

выбора энергий фотонов. Первый, если используются две значительно отличающиеся энергии, то различия в наклоне кривой зависимости μ от E для компонентов с высоким Z и низким Z являются достаточными, чтобы провести различие между ними. Второй, если для более тяжелого компонента (с более высоким Z) выбрать близлежащие энергии фотонов, находящиеся на обеих сторонах края поглощения, то окажется, что энергетическая зависимость для массового коэффициента ослабления материала с более высоким Z будет иметь противоположный наклон по отношению к коэффициенту ослабления компонента с низким Z , что делает два компонента легко различимыми. Такой подход наиболее перспективен для анализа ядерных материалов в матрицах с низкой плотностью или для анализа двухкомпонентных ядерных материалов.

9.3.2 Точность измерения

Основным источником случайной неопределенности измерения является статистическая дисперсия результатов измерений коэффициента пропускания. Выражение для относительной погрешности концентрации каждого компонента имеет следующий вид:

$$\frac{\sigma(\rho_1)}{\rho_1} = \frac{1}{\mu_2^1 \ln T_2 - \mu_2^2 \ln T_1} \left\{ \left[\mu_2^2 \frac{\sigma(T_1)}{T_1} \right]^2 + \left[\mu_2^1 \frac{\sigma(T_2)}{T_2} \right]^2 \right\}^{1/2},$$

$$\frac{\sigma(\rho_2)}{\rho_2} = \frac{1}{\mu_1^2 \ln T_1 - \mu_1^1 \ln T_2} \left\{ \left[\mu_1^2 \frac{\sigma(T_1)}{T_1} \right]^2 + \left[\mu_1^1 \frac{\sigma(T_2)}{T_2} \right]^2 \right\}^{1/2}. \quad (9.10)$$

Отметим, что поскольку результат анализа изменяется обратно пропорционально толщине образца (см. уравнение (9.8)), то толщина образца x должна быть очень хорошо известна или оставаться постоянной в пределах небольшого допуска.

9.3.3 Распространение на случай большего числа значений энергий

В принципе, методика многоэнергетической плотнометрии может быть расширена до трех или более значений энергий с целью измерения трех или большего числа компонентов образца. На практике такое расширение методики ухудшает чувствительность измерения для некоторых компонентов образца, поскольку чрезвычайно трудно выбрать энергии гамма-квантов, которые могут представлять различные энергетические зависимости поглощения каждого компонента. Поэтому многоэнергетическая плотнометрия редко выходит за рамки двухэнергетического варианта.

9.4 ПЛОТНОМЕТРИЯ ПО КРАЮ ПОГЛОЩЕНИЯ

Плотнометрия по краю поглощения представляет собой частный случай применения двухэнергетической плотнометрии. Энергии фотонов при каждом измерении коэффициентов пропускания выбираются как можно ближе по значению и

одновременно на противоположных сторонах края кривой поглощения в энергетической зависимости массового коэффициента ослабления для неизвестного материала [1]. В неразрушающем анализе ядерных материалов используются как К-, так и L-III-края поглощения (см. раздел 9.7 по специальным применениям). На рис. 9.3 показаны коэффициенты ослабления для плутония, урана и некоторых материалов с низким Z, включая К- и L-края для тяжелых элементов.

Плотнометрия по краю поглощения включает измерение коэффициента пропускания хорошо коллимированного пучка фотонов через материал образца. Коллимация определяет геометрию измерений, а также снижает интерференцию от излучения, испускаемого материалом образца. Поскольку коллимация выделяет только небольшую часть объема образца, он должен быть очень однородным для того, чтобы анализ был представительным для всего объема материала. Поэтому методика плотнометрии по краю поглощения чаще всего применяется для анализа растворов, хотя используется и для анализа твердых веществ [2-4].

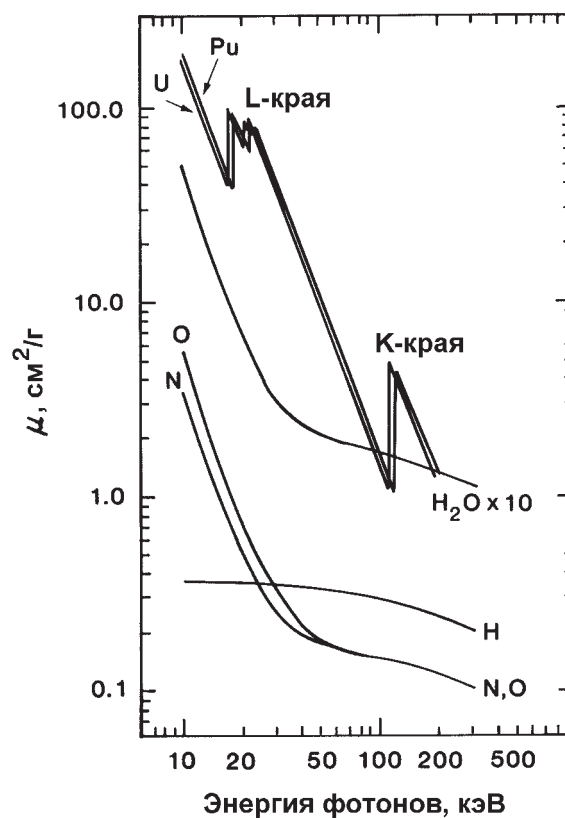


Рис. 9.3. Энергетическая зависимость массовых коэффициентов ослабления фотонов для урана, плутония и некоторых материалов с низким Z. Следует отметить разрывы кривой поглощения (края поглощения) для урана и плутония в энергетических диапазонах от 17 до 20 кэВ (L-край) и от 115 до 122 кэВ (K-край)

9.4.1 Описание методики измерений

Рассмотрим типичный случай ядерного материала — компонента с высоким Z в матрице (растворителе) с низким Z . На рис. 9.4 приведены коэффициенты ослабления и энергии измерения выше (U) и ниже (L) края поглощения. (В обсуждении основной упор делается на измерения по K -краю, однако, этот анализ аналогичен анализу по L -краю). Нижний индекс s относится к измеряемому элементу, а индексы M и m относятся к элементам матрицы с высоким и низким Z , соответственно. Величины скачков коэффициентов поглощения $\Delta\mu$ и рассматриваемые энергии краев поглощения даны в табл. 9.1.

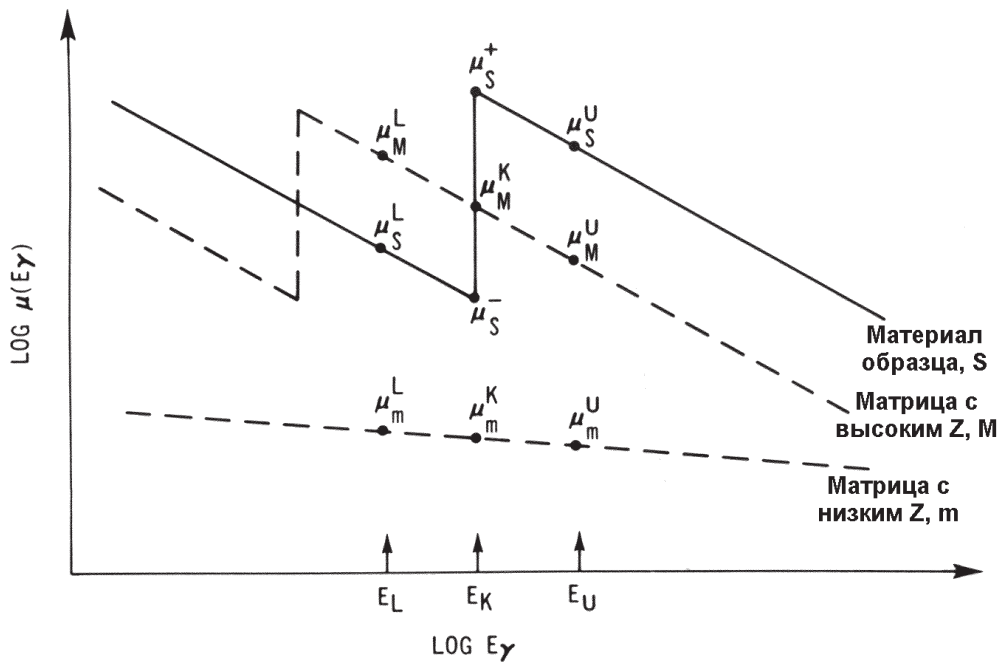


Рис. 9.4. Увеличенное схематическое изображение массового коэффициента ослабления в виде функции энергии фотонов. Показаны кривые для материала образца (S), предположительно тяжелого элемента, компонента матрицы (M), являющегося тяжелым элементом, и компонента матрицы (m), являющегося легким элементом

Таблица 9.1 – Энергии краев поглощения и скачки кривой поглощения для отдельных компонентов ЯМ

Характеристика	Уран	Плутоний
$E(K)$	115,6 кэВ	121,8 кэВ
$E(L_{III})$	17,2 кэВ	18,0 кэВ
$\Delta\mu(K)$	3,7 см ² /г	3,4 см ² /г
$\Delta\mu(L_{III})$	55,0 см ² /г	52,0 см ² /г

Уравнение (9.11) дает коэффициент пропускания фотонов через раствор при двух энергиях измерения E_U и E_L :

$$\ln T_L = -(\mu_s^L \rho_s + \mu_m^L \rho_m) x,$$

$$\ln T_U = -(\mu_s^U \rho_s + \mu_m^U \rho_m) x. \quad (9.11)$$

Решением для концентрации измеряемого элемента является:

$$\rho_s = \frac{1}{\Delta\mu x} \ln \left(\frac{T_L}{T_U} \right) + \rho_m \left(\frac{\Delta\mu_m}{\Delta\mu} \right), \quad (9.12)$$

где $\Delta\mu = \mu_s^U - \mu_s^L > 0$,

$$\Delta\mu_m = \mu_m^L - \mu_m^U > 0. \quad (9.13)$$

Второй член в уравнении (9.12) выражает вклад от матрицы растворителя. Поскольку коэффициенты пропускания измеряются относительно пустого контейнера для образца, коэффициент пропускания самого контейнера для образца не влияет на уравнение (9.12). Отметим схожесть уравнения (9.12) с одноэнергетическим случаем (уравнение (9.3)), при замене μ на $\Delta\mu$.

Поскольку член матрицы в уравнении (9.12) не зависит от концентрации ядерного материала и геометрии измерительной ячейки для образца, он может быть применен к любому измерению плотности по краю поглощения, для которого коэффициент пропускания раствора измеряется относительно пустого контейнера для образца. В идеале, если $E_L = E_U = E_K$, то $\Delta\mu_m = 0$, и измерение является полностью нечувствительным к каким-либо эффектам матрицы. На практике, однако, два значения энергии измерения отличаются на конечную величину, поэтому может понадобиться некоторая остаточная поправка на матрицу. В случаях, когда вклад матрицы может оказаться значительным, он может быть определен эмпирическим путем, анализируя раствор, который содержит только материал матрицы, или этот эффект может быть рассчитан аналитически. Для дальнейшего обсуждения поправок на матрицу для плотнометрии по краю поглощения см. раздел 9.4.4.

Отношение двух коэффициентов пропускания при двух значениях энергии измерения $R = T_L/T_U$ является измеряемой величиной, а $\Delta\mu$ и x — постоянными, которые могут быть оценены из измерений коэффициента пропускания с градуировочными стандартными образцами точно определенных концентраций. Совместно с тщательно подобранными энергиями фотонов эта методика обеспечит очень достоверный, практически независимый от матрицы анализ отдельных эле-

ментов, края поглощения которых лежат между энергиями фотонов источника излучения пропускания.

9.4.2 Точность измерения

Дифференцирование уравнения (9.12) дает относительную погрешность измерения плотности:

$$\frac{\sigma(\rho_s)}{\rho_s} = \left(\frac{1}{\Delta\mu\rho_s x} \right) \left[\frac{\sigma(R)}{R} \right] = \left(\frac{1}{\ln R} \right) \left[\frac{\sigma(R)}{R} \right]. \quad (9.14)$$

Частично погрешность в R определяется статистикой измерений коэффициента пропускания. По аналогии с обсуждением уравнения (9.4), выбор параметров измерения может быть сделан путем сравнения с характеристической концентрацией $\rho_c = 1/\Delta\mu x$. Когда $\rho > \rho_c$, измерение проводится в наилучшем режиме, в котором $\sigma(\rho)/\rho < \sigma(R)/R$. Но если концентрация ядерного материала намного выше ρ_c , избыточное поглощение ухудшает точность измерения в основном из-за возросшего поглощения пропускаемого гамма-излучения над краем поглощения. Статистические флуктуации очень небольшой интенсивности прошедших фотонов при энергии E_U подавляются статистическими флуктуациями фона в этой энергетической области.

В табл. 9.2 приведены значения этих характеристических концентраций для 1 см длины пути прохождения излучения ($x = 1$ см). Предполагается, например, что для измерительной ячейки для образца толщиной 1 см, анализ по К-краю концентраций плутония, превышающих 300 г/л, будет находиться в оптимальном по точности режиме. Для анализа растворов с концентрациями 30 г/л толщина ячейки для образца должна быть больше 0,5 см для анализа по L_{III} -краю и больше 9 см для анализа по К-краю.

Таблица 9.2 – Характеристические концентрации для урана и плутония

Характеристическая концентрация	Уран, г/л	Плутоний, г/л
$\rho_c(K)$	270	294
$\rho_c(L_{III})$	18	19

Для оптимизации параметров измерения может быть использован более аналитический подход. На рис. 9.5 показана расчетная статистическая погрешность измерения (уравнение (9.14)) в зависимости от длины пути прохождения излучения x для различных концентраций ядерного материала. На рисунке показано, например, что плотномер, разработанный для анализа растворов ядерного материала с концентрацией 30 г/л, должен иметь толщину измерительной ячейки для образца от 7 до 10 см.

Последняя проверка при оценивании конструкции плотномера состояла в эмпирическом определении точности анализа. На рис. 9.6 показана погрешность серии измерений с плотномером по К-краю, разработанном для анализа растворов плутония с низкими и средними концентрациями, при толщине ячейки для

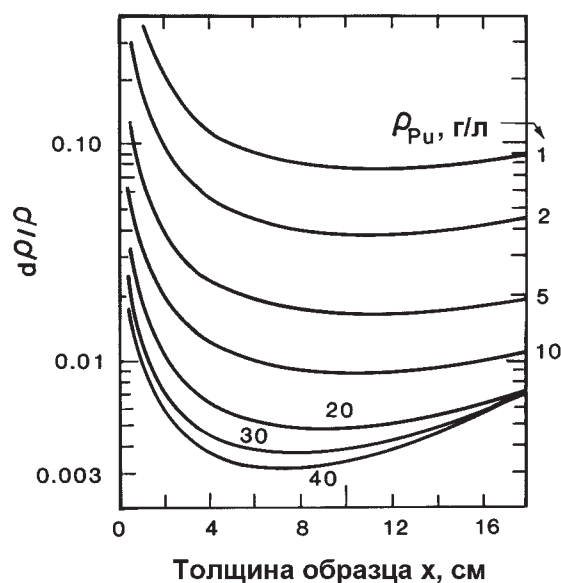


Рис. 9.5. Зависимость расчетной относительной статистической неопределенности концентрации плутония, полученной методом плотнометрии по К-краю, от толщины ячейки для образца (длины пути прохождения излучения). Пропускание в области фотопика с энергией 121,1 кэВ пустой ячейки ниже К-края (I_{02}) было взято равным 2×10^6 отсчетов

образца 7 см [5]. Рис. 9.6 хорошо согласуется с теоретической кривой, представленной на рис. 9.5.

Расчеты погрешности измерения полезны при определении оптимальных параметров конструкции прибора. На рис. 9.7 показаны результаты таких расчетов как для плотномеров по К-краю, так и для плотномеров по L_{III} -краю [6]. Диапазоны концентраций плутония, при которых относительная погрешность измерения меньше 1%, показаны для различных толщин образца x .

9.4.3 Чувствительность измерения

Полезным параметром в технических характеристиках измерительного устройства неразрушающего анализа является его “минимальный порог обнаружения”, который представляет собой такое количество ядерного материала, которое создает сигнал, превышающий фон за приемлемое время измерения [7, 8]. Для измерений ядерных отходов, где минимальный порог обнаружения является важной технической характеристикой прибора, сигнал считается значимым, если он превышает фоновый сигнал на три стандартных отклонения (доверительная вероятность 99 %) [9]. Этот порог также можно рассматривать как чувствительность измерения, в этом случае он характеризует нижний предел количества ядерного материала, которое может быть обнаружено с некоторым доверительным уровнем.

Поскольку плотнометры по краю поглощения обычно выполняются для конкретных задач анализа в точно определенных диапазонах концентраций растворов ядерных материалов, минимальный порог обнаружения практически не важен.

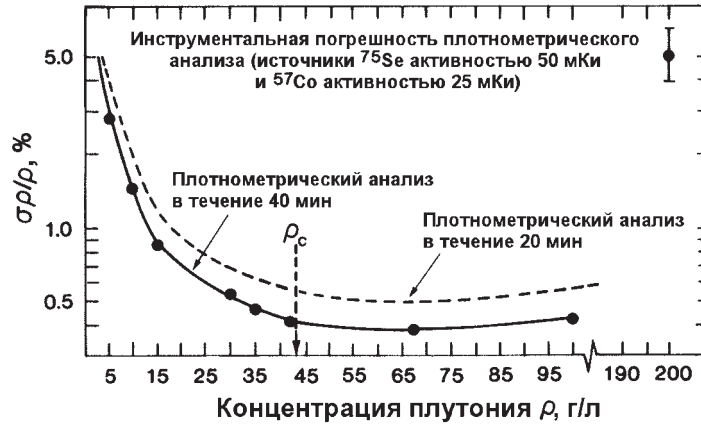


Рис. 9.6. Зависимость относительной статистической погрешности, достижимой в измерении концентрации плутония методом плотнометрии по К-краю, от концентрации образца для толщины измерительной ячейки, равной 7 см. Обратите внимание на разрыв шкалы выше 100 г/л. Показаны кривые для двух времен измерения [5]

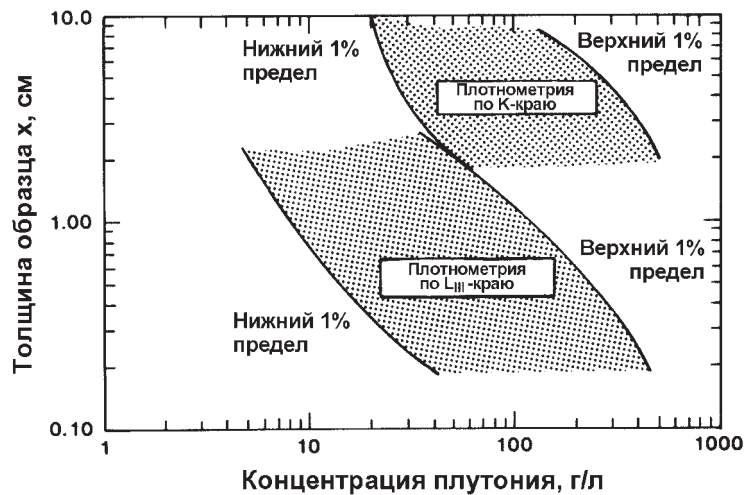


Рис. 9.7. Показатели толщины пропускания образца x , в диапазоне которых анализ концентрации плутония может быть выполнен методом плотнометрии по краю поглощения с погрешностью меньше, чем 1% статистической погрешности. Заштрихованные области для методик по К- и L_{III} -краю показывают диапазоны концентраций, в которых эта погрешность достигается

Однако чувствительность измерения может служить в качестве удобной величины для сравнения конструктивных подходов и других факторов, влияющих на работу средства измерения.

Чтобы получить выражение для чувствительности измерения плотномером по краю поглощения, фон должен быть определен таким образом, чтобы можно было выделить минимальный обнаруживаемый измеряемый сигнал. Статистическая неопределенность измеренной плотности дается уравнением (9.14). Отношение R двух коэффициентов пропускания выше и ниже края поглощения складывается из интенсивностей фотонов исходного гамма- (или рентгеновского) излучения, которые изменяются согласно обычным статистическим распределениям. Когда концентрация ядерного материала равна нулю, раствор целиком представляет собой материал матрицы (как правило, кислоту) и

$$T_U \approx T_L = T = \exp(-\mu_m \rho_m x). \quad (9.15)$$

Когда концентрация ядерного материала равна нулю, $R = 1$, и из определения T получаем:

$$\sigma(\rho) = \frac{1}{\Delta\mu x} \left(\frac{1}{I_{0U}} + \frac{1}{I_{0L}} + \frac{1}{T I_{0U}} + \frac{1}{T I_{0L}} \right)^{1/2}. \quad (9.16)$$

Уравнение (9.16) выражает неопределенность значения фона. Критерий “трех сигм” дает выражение для минимального порога обнаружения (или чувствительности s) для плотномером по краю поглощения:

$$s = \frac{3}{\Delta\mu x} \left[\left(\frac{1}{I_{0U}} + \frac{1}{I_{0L}} \right) \left(\frac{T+1}{T} \right) \right]^{1/2}, \text{ г/л}, \quad (9.17)$$

где $\Delta\mu x$ измеряется в $\text{см}^3/\text{г}$.

Уравнение (9.17) показывает, что чувствительность плотномером подвержена влиянию нескольких параметров измерения:

- чувствительность ухудшается в образцах с низким коэффициентом пропускания;
- длительные времена счета неослабленных интенсивностей фотонов I_0 повышают чувствительность измерения;
- измерения по L-краю (с более высоким $\Delta\mu$) более чувствительны, чем измерения по K-краю, если все другие параметры измерения остаются теми же самыми;
- увеличение толщины ячейки для образца может повысить чувствительность измерения, но сопутствующее снижение T будет конкурировать с этим улучшением.

9.4.4 Эффекты матрицы

Методика плотнометрии по краю поглощения нечувствительна к влиянию материалов матрицы, если оба коэффициента пропускания измеряются на краю поглощения. Однако, при конечной разнице в энергиях пропускаемых гамма-квантов, вклад матрицы не равен нулю и представлен вторым членом в уравнении (9.12). Этот член может стать существенным для низких концентраций

ядерного материала ρ_s или когда разность между значениями энергий анализа E_L и E_U становится большой; оба условия нарушают неравенство $\Delta\mu_m\rho_m < \Delta\mu\rho_s$.

При использовании фотонов с близкими энергиями с целью минимизации эффектов ослабления в матрице при конструировании измерительного средства внутренними ограничениями являются естественная ширина пика поглощения (менее 130 эВ) и энергетическое разрешение детектирующей системы (обычно 500 эВ или больше). Ограниченная доступность полезных радиоизотопов естественного происхождения также приводит к необходимости компромиссов при выборе источников излучения.

Одной из очень полезных методик снижения эффекта матрицы является процедура экстраполяции, применяемая к результатам измерения коэффициента пропускания [2, 5]. Процедура заключается в попытках экстраполировать измеренные коэффициенты пропускания к энергии края поглощения. Эта экстраполяция возможна потому, что энергетическая зависимость массовых коэффициентов ослабления в узких энергетических диапазонах, как известно, подчиняется степенному закону:

$$\log\mu(E) = k \log E + B. \quad (9.18)$$

Коэффициент наклона k обычно одинаков для элементов с $Z > 50$, со средним значением приблизительно $-2,55$ вблизи К-краев урана и плутония [2]. В табл. 9.3 представлены выбранные значения коэффициентов наклона и пересечения прямой с осью для нескольких веществ, представляющих интерес для анализа ядерного материала [10].

В качестве примера общего случая анализа рассмотрим раствор ядерного материала в растворителе с низким Z с возможными дополнительными загрязнениями матрицы тяжелыми элементами ($Z > 50$). Уравнение (9.12) обобщается до выражения

$$\rho_s = \left(\frac{1}{\Delta\mu_x} \right) \ln \left(\frac{T_L}{T_U} \right) + \rho_M \left(\frac{\Delta\mu_M}{\Delta\mu} \right) + \rho_m \left(\frac{\Delta\mu_m}{\Delta\mu} \right). \quad (9.19)$$

Нижний индекс M относится к загрязнению матрицы с высоким Z , а индекс m представляет матрицу с низким Z (растворитель); и по аналогии с уравнением (9.13) $\Delta\mu_M = \mu_M^L - \mu_M^U$ (см. рис. 9.4). Затем измеренные коэффициенты пропускания экстраполируются к К-краю ядерного материала с использованием энергетической зависимости $\mu(E)$ для тяжелых элементов. Поскольку коэффициенты наклона k для $Z > 50$ практически одни и те же, коэффициенты поглощения ядерного материала и матрицы с высоким Z могут быть преобразованы с тем же k (например, среднее значение $-2,55$). В итоге преобразованный $\Delta\mu_M$ обращается в нуль, и результат анализа становится следующим:

$$\rho_s = \left(\frac{1}{\Delta\mu_{\pm x}} \right) \ln \left(\frac{T_L^a}{T_U^b} \right) + \left(\frac{c\mu_m^K\rho_m}{\Delta\mu_{\pm}} \right), \quad (9.20)$$

где $\Delta\mu_{\pm}$ (который равен $\mu_s^+ - \mu_s^-$, см. рис. 9.4) теперь определяется вдоль края поглощения (в данном случае К-края), а не между энергиями E_L и E_U . Постоянные a , b и c определяются как:

$$\begin{aligned}
 a &= (E_K / E_L)^k, \\
 b &= (E_K / E_U)^k, \\
 c &= (E_K / E_L)^{k-k'} - (E_K / E_U)^{k-k'},
 \end{aligned}
 \tag{9.21}$$

где $k = -2,55$, а $k' = -0,33$ (среднее значение k для элементов с атомными номерами меньше 10). Эта процедура делает анализ по существу независимым от матрицы с тяжелым элементом, но все еще оставляет остаточную поправку для матрицы с легким элементом. Невозможно устранить эффекты обоих матричных материалов как с легким, так и тяжелым элементом, поскольку $k \neq k'$. Коэффициенты пропускания должны быть откорректированы на вклад матрицы кислоты, поскольку коэффициенты пропускания измеряются относительно пустой ячейки для образца. Если бы эталонный спектр (интенсивности I_0) был получен с ячейкой, заполненной представительным раствором кислоты, то не понадобилась бы поправка на матрицу кислоты. Однако любое отклонение в молярности кислоты внесло бы смещение в результат измерения реального образца. Плотность азотной кислоты ρ_m и молярность кислоты M связаны между собой отношением [11]:

$$\rho_m = 1 + 0,33M. \tag{9.22}$$

Таблица 9.3 – Коэффициенты наклона k и пересечения B для линейной зависимости десятичных логарифмов $\log \mu(E)$ от $\log E$ для различных анализируемых материалов в энергетической области от 100 до 150 кэВ [10]

Компонент раствора	k	B
Плутоний (выше К-края)	-2,48	5,83
(ниже К-края)	-2,56	5,42
Уран (выше К-края)	-2,49	5,82
(ниже К-края)	-2,71	5,65
Вольфрам	-2,50	5,65
Олово	-2,45	5,12
Железо	-1,57	2,70
Алюминий	-0,500	0,227
Вода	-0,306	-0,153
Азотная кислота	-0,314	-0,171

Для анализа по К-краю плутония, для которого значение энергии К-края близко к значениям энергий гамма-излучения ^{57}Co и ^{75}Se (см. раздел 9.4.6), эта поправка на матрицу с низким Z мала, однако может оказаться значимой при низких концентрациях плутония. Например, поправочный член в уравнении (9.20) для 3 М азотной кислоты эквивалентен приблизительно 0,87 г Pu/л [5]. Уравнение (9.22) показывает, что флуктуации в молярности кислоты вызывают флуктуации

в поправке на матрицу кислоты, которая максимально равна 3 %; такой тщательный контроль молярности кислоты важен только при очень низких концентрациях ядерного материала.

Для анализа урана по К-краю с источником излучения ^{169}Yb ($E_L = 109,8$ кэВ, $E_U = 130,5$ кэВ) процедура экстраполяции значительно улучшает качество результатов анализа. Это графически представлено в работе [2], где показано, что анализ растворов урана с изменяющимися концентрациями олова является независимым от матрицы при использовании экстраполяционной поправки. Результаты исследований некоторых других эффектов матрицы описаны в работе [12].

9.4.5 Выбор методики измерений

Из-за различий в значениях $\Delta\mu$ на К-крае и L_{III} -крае, чувствительность измерения (определенная в уравнении (9.17)) по L_{III} -краю более чем на порядок выше чувствительности измерения по К-краю при других равных параметрах (см. также табл. 9.1). Однако, вследствие более высокой проникающей способности фотонов с энергиями в области К-края, для измерений по К-краю могут использоваться более толстые образцы, тем самым повышая чувствительность измерения.

Если в образце присутствуют значительные количества элементов с более низкими Z (такие, как иттрий и цирконий), то К-края этих элементов обусловят дискретные интерференции, смещающие результаты анализа урана и плутония по L_{III} -краю [12]. Более того, разрешение детектора для энергий L_{III} -края ограничивает возможность проведения анализов по L_{III} -краю при наличии значительных количеств соседних элементов (урана с протактинием или нептунием; плутония с нептунием или америцием). Измерения по К-краю не подвержены таким интерференциям. Кроме того, более высокие энергии фотонов, необходимые для измерений коэффициентов пропускания по К-краю, допускают использование более толстых материалов или материалов с более высоким Z для окон измерительных ячеек для образцов, что представляет собой важный практический вопрос при измерениях на производстве. Наконец, для измерений по К-краю имеет место большая гибкость при использовании дискретных источников гамма-излучения.

9.4.6 Источники излучения

Самым универсальным источником излучения является непрерывный спектр тормозного излучения, создаваемый рентгеновским генератором. Интенсивность этого источника можно менять с целью оптимизации скорости счета для различных геометрий, концентраций и толщин образца.

Напряжение рентгеновского генератора (которое определяет энергетический диапазон анализа) можно настраивать, а спектр специально подбирать для анализа конкретных элементов. Кроме того, можно минимизировать матричные эффекты путем экстраполяции измеренных коэффициентов пропускания к краю поглощения. Для долговременной надежной работы в энергетических диапазонах как К-краев, так и L_{III} -краев, доступны коммерческие устройства с высокостабильными источниками питания и рентгеновскими трубками, имеющими большой срок службы.

В нескольких измерительных устройствах было успешно продемонстрировано применение дискретных линий гамма-излучения, которые окружают край поглощения, являющихся альтернативой непрерывным источникам излучения пропускания. Эта методика подходит для анализа по К-краю. Дискретные гамма-кванты не подходят в качестве первичного излучения в энергетическом диапазоне L_{III} -края. Это зависит от доступности относительно медленно распадающихся радиоизотопов, которые испускают гамма-кванты с соответствующими энергиями и достаточными интенсивностями. Например, удобной комбинацией для анализа плутония по К-краю ($E_K = 121,8$ кэВ) является гамма-излучение с энергией 121,1 кэВ от ^{75}Se (период полураспада 120 дней) и гамма-излучение с энергией 122,1 кэВ от ^{57}Co (период полураспада 270 дней). Близость обоих значений энергий к краю поглощения плутония минимизирует эффекты матрицы и повышает чувствительность анализа [1]. Из-за разных периодов полураспада требуются точные поправки на радиоактивный распад или частые измерения неослабленных интенсивностей I_0 . Применение ^{169}Yb (период полураспада 32 дня) для анализа урана по К-краю [2, 3] обладает тем преимуществом, что не требуется поправка на распад, поскольку оба гамма-кванта идут от одного и того же источника. Однако большая разница в значениях энергий ($E_L = 109,8$ кэВ, $E_K = 115,6$ кэВ, $E_U = 130,5$ кэВ) приводит к большей чувствительности к матрице (большой $\Delta\mu_m$) и меньшей чувствительности анализа (меньший $\Delta\mu$). Кроме того, чтобы поддерживать приемлемую счетную статистику, источник должен часто заменяться вследствие короткого периода полураспада ^{169}Yb . Методика экстраполяции, рассматриваемая в разделе 9.4.4, особенно эффективна для снижения чувствительности к матрице. Подробное обсуждение удобных радиоактивных источников для плотнометрии по краю поглощения приведено в [1]. Несколько вариантов конфигураций этих двух основных источников излучения обсуждаются в [12].

9.5 МОНОЭНЕРГЕТИЧЕСКИЕ ПЛОТНОМЕРЫ

Для анализа ядерных материалов в растворе и в топливных стержнях реактора применялось измерение коэффициента пропускания фотонов с одной энергией при использовании детекторов низкого разрешения. В этих измерительных устройствах применяются источники низкоэнергетического гамма-излучения с целью минимизации отношения μ_0/μ (см. уравнение (9.3)) и, таким образом, снижения чувствительности к изменениям в матрице с низким Z .

В одном из измерительных устройств используется источник излучения ^{241}Am , установленный в центре круглой измерительной ячейки, содержащей раствор ЯМ [13, 14]. Ячейка окружена пластмассовым сцинтиллятором с 4π -геометрией. Устройство отделяет пропускаемое гамма-излучение с энергией 60 кэВ от фонового излучения образца путем модулирования источника с вращающейся щелевой вольфрамовой защитой. Разработанный для анализа высоких концентраций ЯМ (>200 г/л), этот прибор чувствителен к изменениям концентрации ядерного материала в 1 % с доверительной вероятностью 95 %.

Моноэнергетические плотномеры используются для определения плотности ядерных материалов в таблетированных и спрессованных керамических топливных элементах [15]. Гамма-кванты ^{171}Tm с энергиями 67 и 76 кэВ и гамма-кванты ^{170}Tm с энергией 84 кэВ регистрируются детектором NaI(Tl) диаметром 2,5 см.

Для получения профиля плотности ядерного материала суммарные сигналы детектора подсчитываются в многоканальном пересчетном режиме по мере того, как сканируются топливные элементы. Чувствительность прибора к ядерным материалам равна $0,2 \text{ г/см}^3$ при доверительной вероятности 95 %.

9.6 ДВУХЭНЕРГЕТИЧЕСКИЕ ПЛОТНОМЕРЫ

Двухэнергетическая плотнометрия применяется для твердых веществ (топливных элементов) и растворов. Используются гамма-спектрометры высокого и низкого разрешения, которые применяются для анализа компонентов с высоким и низким Z , а также для анализа двух компонентов с высоким Z .

Двухэнергетический плотномер используется для определения плотностей компонентов с низким Z (кремний и углерод) и с высоким Z (торий и уран) в топливных таблетках высокотемпературного реактора с газовым охлаждением [16 и 17]. Источник излучения обеспечивает гамма-излучение с двумя сильно отличающимися энергиями (122 кэВ от ^{57}Co и 1173 и 1332 кэВ от ^{60}Co), так что чувствительность к двум компонентам базируется на разных коэффициентах наклона зависимости μ от E при низких и высоких Z . В этом случае применяется уравнение (9.9). Спеченные топливные таблетки, содержащие от 92 до 95 % тория и от 5 до 8 % ^{238}U с весовым отношением компонентов с низким Z относительно тяжелых элементов, находящимся в диапазоне от 1,6 до 2,4, анализировались с временами измерения 2 мин. Чувствительность к изменениям в весе каждого компонента составила 3 % или лучше при доверительной вероятности 95 %.

Двухэнергетическая плотнометрия растворов также применяется для анализа двух ЯМ компонентов путем измерения коэффициентов пропускания при двух низких энергиях гамма-излучения [18, 19]. Энергии пропускаемого излучения выбирались таким образом, чтобы охватить L-края поглощения компонента с более высоким Z (элемент 2) и чтобы в уравнении (9.8) выполнялись условия: $\mu_1^1 > \mu_1^2$ и $\mu_2^1 = \mu_2^2$. Таким образом, уравнение (9.8) можно решить, получив концентрацию элемента 1 независимо от элемента 2:

$$\rho_1 = \left(\frac{1}{\Delta\mu_1 x} \right) \ln \left(\frac{T_1}{T_2} \right), \quad (9.23)$$

где $\Delta\mu_1 = \mu_1^1 - \mu_1^2$. Затем измеренные величины T_2 и ρ_1 используются для получения концентрации элемента 2:

$$\rho_2 = \left(\frac{\ln T_2}{\mu_2^2} \right) - \frac{\rho_1 \mu_1^2}{\mu_2^2}. \quad (9.24)$$

Двухэнергетическая плотнометрия применяется к анализу тория и урана с использованием вторичных источников рентгеновского излучения K_α -серии ниобия и йода (с энергиями 16,6 и 28,5 кэВ, соответственно), возбуждаемого источником ^{241}Am активностью 100 мКи. Это рентгеновское излучение охватывает L-края урана. Однако энергия 16,6 кэВ находится как раз над L_{III}-краем поглощения тория (16,3 кэВ). Измерения проводились с использованием гамма-спектрометрии низкого [18] и высокого разрешения [19]. В экспериментах с высоким разрешением использовались эталонные растворы, содержащие смеси тория и урана

с полными концентрациями ядерных материалов в диапазоне от 35 до 70 г/л. В диапазоне $0,25 \leq \rho_{\text{Th}}/\rho_{\text{U}} \leq 4,0$ относительная погрешность анализа концентраций тория и урана составила 1 % или лучше для времени измерения 4000 с.

9.7 ПЛОТНОМЕРЫ ПО КРАЮ ПОГЛОЩЕНИЯ

Анализ растворов урана и плутония с помощью методики плотнометрии по краю поглощения был продемонстрирован в полевых испытаниях нескольких измерительных устройств, которые осуществляли измерения по К-краю или L_{III} -краю. Устройства были разработаны для применений в технологических процессах извлечения ЯМ из растворов скрапа или переработки. В каждом измерительном устройстве используется гамма-спектрометр высокого разрешения (обычно с детектором из особо чистого германия (ОЧГ) для анализов по К-краю и Si(Li) — для анализов по L_{III} -краю) и многоканальный анализатор на базе процессора. Погрешность измерения, достигаемая в каждом случае, приближается к статистически прогнозируемому значению, обычно равному 0,5 % или менее для коротких времен измерения (≤ 30 мин).

Источники излучения, используемые в измерительных системах по К-краю, представляют собой источники дискретного гамма-излучения или источники непрерывного тормозного излучения (рентгеновского излучения). Для дискретного анализа урана по К-краю используются гамма-кванты ^{169}Yb с энергиями 109,8 и 130,5 кэВ, а для дискретного анализа плутония по К-краю — гамма-кванты ^{75}Se и ^{57}Co с энергиями 121,1 и 122,1 кэВ. В измерительных системах по L_{III} -краю используются только рентгеновские генераторы.

Анализ по краю поглощения основан на уравнении (9.12). Точность анализа (уравнение (9.14)) зависит от нескольких переменных, включая $\Delta\mu$, x , концентрацию раствора, время измерения и интенсивность падающего пучка. Поэтому удобно при сравнении разных измерительных систем использовать параметр характеристической концентрации $\rho_c = (1/\Delta\mu x)$ для каждой измерительной системы. Относительная погрешность измерительной системы определяется как погрешность, измеренная за фиксированное время измерения при оптимальной концентрации, которая представляет собой концентрацию, для которой относительная погрешность $[\sigma(\rho)/\rho]$ является минимальной (см. рис. 9.5 и 9.6).

В табл. 9.4 и 9.5 перечислены плотномеры по К-краю и L_{III} -краю, которые подверглись полевым испытаниям. Для каждого измерительного устройства приводится характеристическая концентрация ρ_c и оптимальная концентрация $\rho_{\text{опт.}}$, определенная эмпирическим путем (указана в скобках под ρ_c). В таблицах указаны растворы, использованные для получения данных, и представлены измеренные погрешности при оптимальных концентрациях и заданных временах измерения. Подробное обсуждение измерительных устройств, перечисленных в табл. 9.4 и 9.5, представлено в разделах 9.7.1 и 9.7.2.

9.7.1 Плотномеры по К-краю поглощения

Ниже приведены описания нескольких плотномеров по К-краю, которые испытывались и аттестовывались в реальных или в модельных производственных условиях эксплуатации. В табл. 9.4 сведены рабочие характеристики приборов.

Таблица 9.4 – Плотномеры по К-краю поглощения

Место испытаний	ρ_c ($\rho_{\text{опт.}}$), г/л	Ядерный материал	Тип раствора	Погреш- ность $1\sigma, \%$	Время измере- ния, с	Лите- ратура
1. Лос-Аламос	135 (300)	U	ВОУ из ВС*, смеш.	0,5	1000	[12, 20, 21]
2. Ок-Ридж, завод Y-12	55 (100)	U	ВОУ из ВС*, смеш.	0,5	600	[22, 23]
3. Барнуэлл, AGNS	80 (200)	Pu	Приготов- ленный (свежий, выдержан- ный)	0,2	1200	[12, 24, 25]
4. Токай (Япония), PNC	150 (300)	Pu	Продукт с ЗП** (свежий, выдержан- ный)	0,2	2000	[12, 26, 27, 28]
5. Саванна-Ривер, SRP	40 (60)	Pu	Продукт с ЗП** (свежий)	0,2	2000	[5, 12, 29]
6. Сейберсдорф (Австрия), МАГАТЭ (портативный)	150 (300)	Pu	Приготов- ленный	0,3	500	[30]
7. Карлсруэ (ФРГ), центр KfK (непрерывный источник)	150 (300)	U	Приготов- ленный	0,2	1000	[12, 31, 32] 33
		Pu	Продукт с ЗП**	0,2	1000	
		U(+Pu)	Исходный продукт с ЗП** U:Pu = 3:1	0,2	1000	
		Pu(+U)		1,0	1000	

*ВС — восстановленный скрап.

**ЗП — завод по переработке топлива.

Таблица 9.5 – Плотномеры по L_{III} -краю поглощения

Место испытаний	ρ_c ($\rho_{\text{орг.}}$), г/л	Ядерный материал	Тип раствора	Погрешность 1 σ , %	Время измерения, с	Литература
1. Саванна-Ривер, SNL	16 (50)	U или Pu	Продукт с ЗП*	0,3	1000	[12, 21, 34]
		U(+Pu)	Продукт с ЗП* U:Pu = 2:1	0,2	2000	
		Pu(+U)		1,0	2000	
2. Аргонн, NBL	16 (50)	U или Pu	Приготовленный	0,3	1000	[35]
		U(+Pu)	приготовленный U:Pu = 2:1	0,2	2000	
		Pu(+U)		0,9	2000	
3. Барнуэлл, AGNS	19 (55)	U	Уран природного обогащения (проточный)	0,7	250	[36]
4. Лос-Аламос (компактный)	16 (60)	U	Уран природного обогащения	0,2	1000	[37]

*ЗП – завод по переработке топлива

1. Лос-Аламосская национальная лаборатория [12, 20, 25]. Лос-Аламосская система анализа растворов урана USAS (Uranium Solution Assay System) представляет собой гибридное измерительное устройство, используемое в автономном режиме на Лос-Аламосской установке по восстановлению скрапа высокообогащенного урана (ВОУ). Измерительная головка USAS показана на рис. 9.8 и 9.9.

В системе USAS для анализа концентраций урана в образцах растворов урана объемами 20 или 30 мл (в одноразовых пластмассовых ампулах для образцов) в трех диапазонах концентраций используются три разных гамма-метода. Растворы отходов с концентрациями урана от 0,001 до 0,5 г/л измеряются в течение 2000 с без поправки на коэффициент пропускания. Технологические растворы с концентрациями в диапазоне от 1 до 50 г/л измеряются с использованием источника излучения ^{169}Yb . Диапазон наивысших концентраций от 50 до 400 г/л, соответствующий технологическим растворам, анализируется методом по К-краю с применением источника излучения ^{169}Yb . Используя времена измерения от 400 до 2000 с, можно достичь погрешностей анализа от 0,7 до 1,5 %.

Результаты анализа используются для контроля технологического процесса и учета ядерных материалов. Измерительная система эксплуатировалась на установке по восстановлению скрапа с января 1976 г. по август 1984 г., когда установка была закрыта.



Рис. 9.8. Измерительная головка системы USAS

2. Ок-Риджский завод Y-12 [22, 23]. На установке по восстановлению скрапа высокообогащенного урана (BOY) на Ок-Риджском заводе Y-12 используется система анализа растворов SAS (Solution Assay System), аналогичная USAS. Для анализа образцов растворов урана объемом 50 мл в диапазоне концентраций от 50 до 200 г/л используется метод анализа по К-краю. В состав образцов входит определяемый продукт, но состав обычно не ограничен только им. В системе SAS используется источник излучения ^{169}Yb и одноразовые пластмассовые ампулы с пробами. Система запущена в эксплуатацию на заводе Y-12 в октябре 1981 г. для контроля технологического процесса и учета ядерных материалов.

3. Объединенные ядерные службы AGNS (Allied General Nuclear Services) [12, 24, 25]. Плотномер по К-краю с дискретным источником был аттестован для анализа плутония на установке AGNS в Барнуэлле, штат Южная Каролина, в 1977-1978 гг. Гибридное измерительное устройство выполняло пассивные измерения гамма-излучения и измерения по К-краю на приготовленных образцах растворов типичного плутония легководных реакторов объемом 10 мл в стационарных кварцевых ячейках для образцов. Источник излучения — комбинация ^{75}Se и ^{57}Co . Были представлены результаты для ячеек с разной длиной пути прохождения излучения (толщиной ячейки).

4. Корпорация энергетических реакторов и разработки ядерного топлива PNC (Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation) [12, 26-28]. Плотномер по К-краю с дискретным источником работает в аналитической лаборатории перерабатывающего завода Токай-Мура при "Корпорации энергетиче-

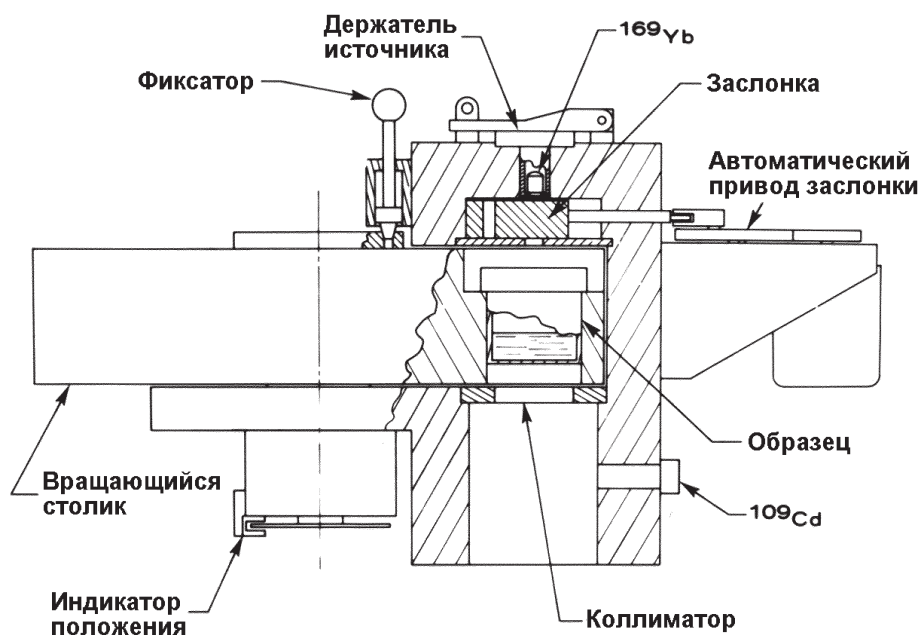


Рис. 9.9. Масштабированный чертеж измерительной головки системы USAS. Толщина раствора на пути прохождения излучения равна 2 см

ских реакторов и разработки ядерного топлива" в Японии. Образцы растворов свежевыделенного и выдержанного плутония, являющегося продуктом переработки топлива реакторов на кипящей воде и с водой под давлением, анализируются с помощью метода по К-краю в двухциклическом анализе (сначала с источником излучения ^{75}Se , затем — ^{57}Co). На рис. 9.10 показано расположение измерительной станции под перчаточным боксом в заводской лаборатории Токай-Мура. Рис. 9.11 представляет собой масштабированный чертеж измерительной головки, которая включает в себя колодец, спускающийся вниз от пола перчаточного бокса. Прибор выполняет анализ изотопов свежих растворов в третьем цикле. Образцы растворов анализируются в колодце, который является продолжением перчаточного бокса. Детектор гамма-излучения и источники излучения находятся снаружи перчаточного бокса. Ячейки для образцов представляют собой одноразовые пластмассовые ампулы, в которые помещается приблизительно 10 мл раствора.

Токайская измерительная система была установлена в ноябре 1979 г. и эксплуатировалась в течение 1980 г. в режиме аттестации. С начала 1981 г. измерительная система перешла в обычную эксплуатацию. На рис. 9.12 представлен график разности в процентах между результатами анализа по К-краю и эталонными значениями (из разрушающего анализа), полученными в течение 1981 г. во время текущего использования на установке [28]. Плотномер был допущен для использования установкой с 1982 г. после аттестации инспекторами МАГАТЭ.

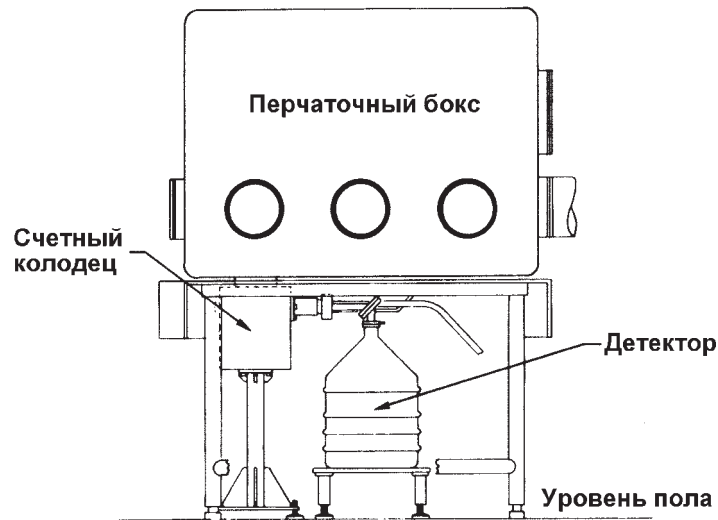


Рис. 9.10. Измерительная станция плотнмера по К-краю из Токай-Мура под лабораторным перчаточным боксом

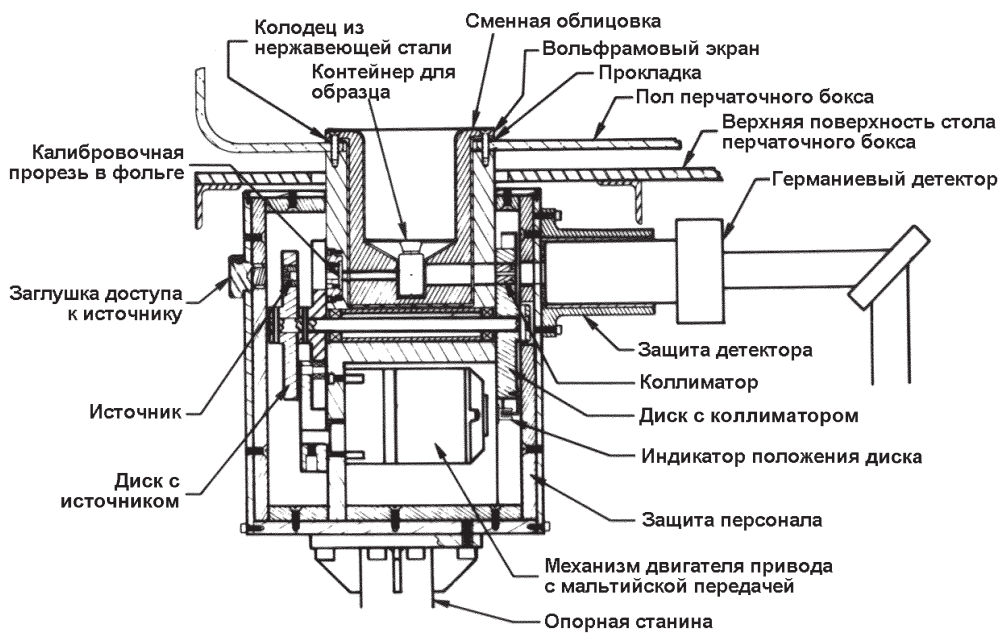


Рис. 9.11. Масштабированный чертеж измерительной головки плотнмера по К-краю из Токай-Мура. Толщина раствора на пути прохождения излучения равна 2 см

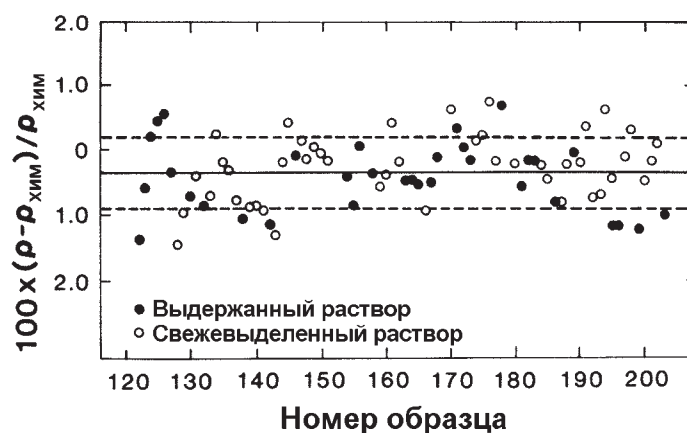


Рис. 9.12. Разность в процентах между результатами анализа по К-краю и разрушающего анализа по определению концентрации плутония, построенная в виде функции идентификационного номера образца. Сплошная линия представляет средний относительный результат, равный 0,36 %. Это очевидное смещение является результатом градуировки (в 1979 г.) с использованием лишь небольшого числа стандартных образцов [27]

5. Завод в Саванна-Ривер SRP (Savannah River Plant) [5, 12, 29]. Плотномер по К-краю с дискретным источником для растворов плутония был разработан для производственных испытаний на заводе в Саванна-Ривер. Проточная кювета из нержавеющей стали была установлена в обводную петлю на резервуарах для хранения технологических растворов и находилась в выступе технологического герметизированного отсека. Детектор и источники излучения размещались снаружи герметизированного отсека на обеих сторонах выступа для измерения коэффициента пропускания гамма-излучения через кювету, наполненную раствором. Рис. 9.13 представляет собой подробное изображение измерительной станции для этого плотномера. На рис. 9.14 представлена установка измерительной системы на технологических трубопроводах. Измерения проводились на статическом растворе объемом 100 мл после циркуляции раствора в резервуаре через отводную петлю (свежевыделенный плутоний в растворах производится во время переработки топлива низкого выгорания). Измерения коэффициента пропускания по К-краю проводились в два цикла, как и в Токайской измерительной системе, а в третьем цикле определялся изотопный состав плутония. Измерительная система также использовалась для исследования измерений концентрации плутония в присутствии примесей урана. К растворам с отношением урана к плутонию выше чем 2:1, применялась процедура экстраполяции, описанная в разделе 9.4.4 [5]. Автономное тестирование измерительной системы проходило на заводе с апреля 1980 г. по декабрь 1981 г. На рис. 9.6 (см. раздел 9.4.2) представлен график погрешности измерения в зависимости от концентрации (в диапазоне от 5 до 200 г/л), полученный при этих испытаниях [5]. Производственные испытания начались в декабре 1982 г. и закончились в июне 1983 г.

6. Аналитическая лаборатория гарантий Международного агентства по Атомной энергии (МАГАТЭ) [30]. Портативный плотномер по К-краю был раз-

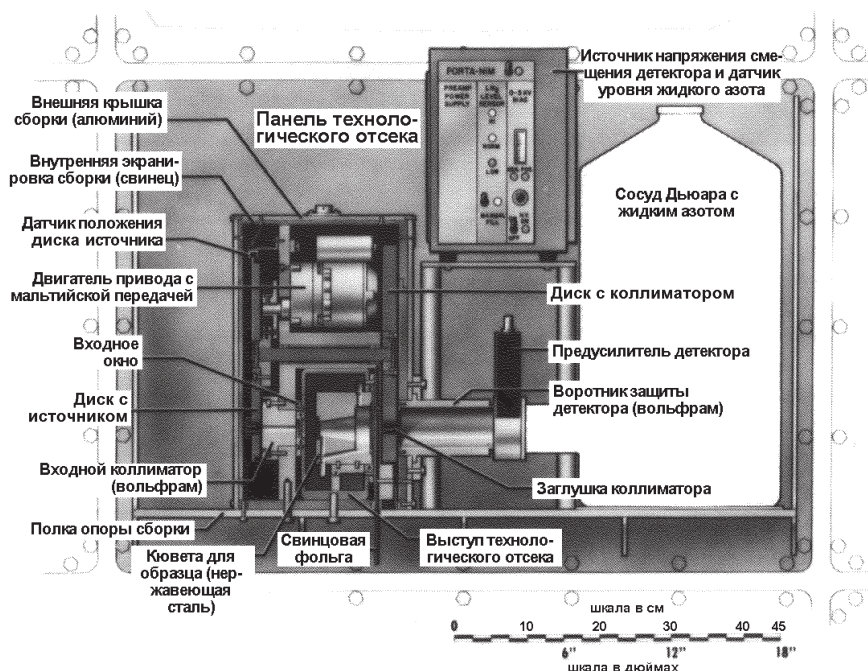


Рис. 9.13. Измерительная станция для плотномера SRP на потоке растворов плутония. Механизм размещения диска с источником и диск с коллиматором (показан слева) охватывают с двух сторон выступ технологического отсека таким образом, что кювета для образца (внутри технологического герметизированного отсека) находится между источниками излучения и детектором, в стандартной геометрии измерения коэффициента пропускания. Толщина кюветы равна 7 см

работан для проведения испытаний в качестве инспекционного инструмента для подтверждения подлинности концентраций образцов плутония внутри перчаточных боксов. Плотномер состоит из корпуса, который поддерживает и защищает детектор и источники излучения пропускания, и портативного многоканального анализатора, оснащенного электроникой для обработки аналогового сигнала. Корпус скользит внутри перчатки перчаточного бокса таким образом, чтобы образец раствора плутония в одноразовой пластмассовой ампуле мог быть установлен и закреплен в держателе между детектором и источником излучения для двухциклического анализа по К-краю. На рис. 9.15 и 9.16 показана измерительная головка портативной измерительной системы по К-краю, вставленная в перчатку перчаточного бокса.

Портативный плотномер испытывался в аналитической лаборатории гарантий МАГАТЭ в Сейберсдорфе (Австрия) с ноября 1983 г. Второй прибор планируется использовать для полевых испытаний инспекторами МАГАТЭ в Японии.

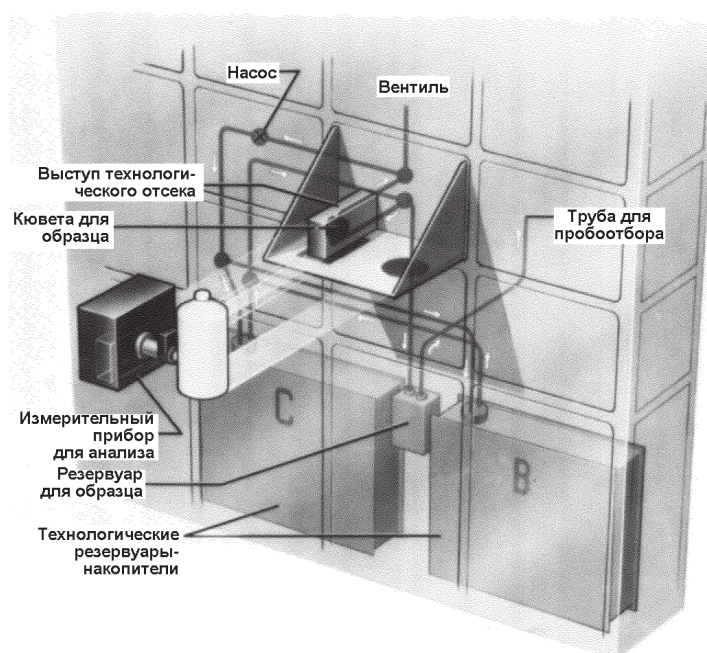


Рис. 9.14. Установка SRP плотномера на потоке растворов плутония. Обводная петля трубопровода подает раствор плутония от одного из резервуаров-накопителей к измерительной кювете. Имеется приспособление для слива содержимого кюветы в промежуточный резервуар, чтобы только что проанализированные образцы материала могли быть изъяты для автономной проверки методами разрушающего анализа

7. Исследовательский ядерный центр в Карлсруэ KfK (Kernforschungszentrum Karlsruhe) [12, 31-33]. Плотномер по К-краю с непрерывным источником излучения испытывался в исследовательском ядерном центре в Карлсруэ, в Федеративной Республике Германии (ФРГ) с 1978 г. Детектор и источник рентгеновского излучения размещены снаружи перчаточного бокса, а образцы и коллиматоры находятся внутри перчаточного бокса. Измерительная система используется для анализа концентраций урана и плутония в растворах продуктов переработки и поступающих на переработку растворах топлива реактора-размножителя на быстрых нейтронах. Гибридная модификация этой измерительной системы использовалась для проведения анализа поступающих на переработку растворов топлива реактора на легкой воде, в которых содержание плутония составляет приблизительно 1% от содержания урана. Непрерывный источник излучения служил как в качестве источника излучения для анализа урана по К-краю, так и в качестве источника флюоресценции для рентгенофлюоресцентного анализа отношения концентрации плутония к концентрации урана. Интенсивность излучения непрерывного источника предусматривает сильную коллимацию образца, необходимую для анализа по К-краю и рентгенофлюоресцентного анализа, при существенном уменьшении скорости пассивного счета от образцов, содержащих высокие концентрации продуктов деления.

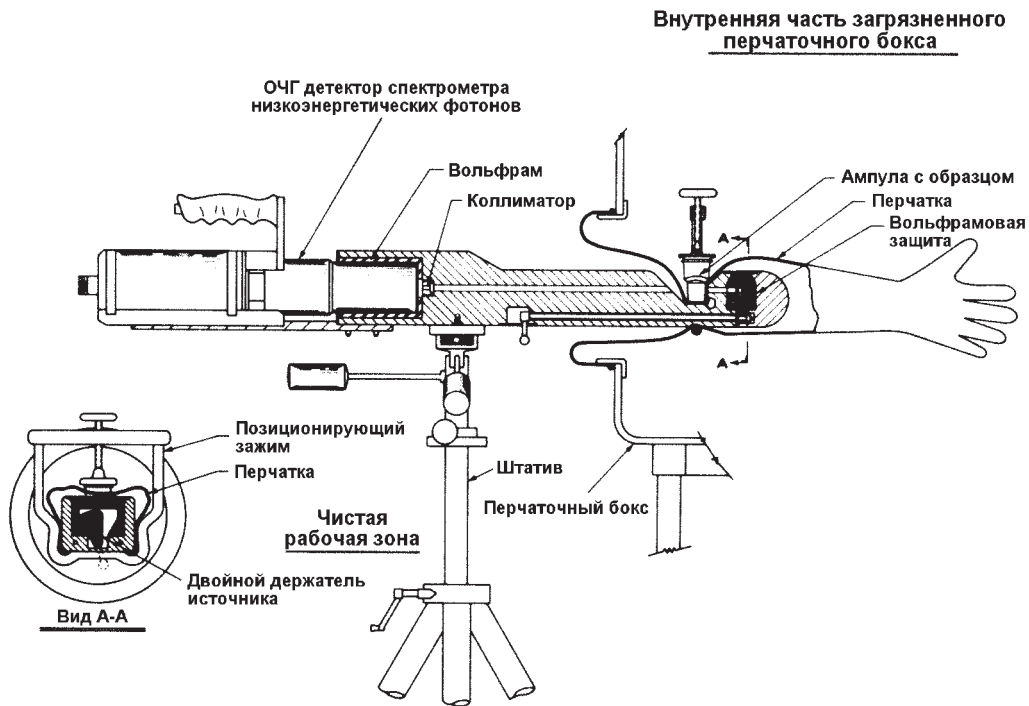


Рис. 9.15. Масштабированный чертеж измерительной головки портативного плотномера по К-краю, вставленной в перчатку перчаточного бокса. Толщина ячейки для образца на пути прохождения излучения равна 2 см

На рис. 9.17 представлен чертеж измерительной головки гибридной измерительной системы. На рис. 9.18 показан плотномер по К-краю в Карлсруэ.

9.7.2 Плотномеры по L_{III} -краю поглощения

Ниже приводятся описания нескольких плотномеров по L_{III} -краю, которые прошли испытания и аттестацию в реальных или смоделированных внутризаводских условиях эксплуатации. Первые три описанных плотномера по L_{III} -краю были разработаны одинаковыми как в механической, так и в электронной части. Фотография измерительной системы AGNS (рис. 9.19) представляет все три измерительные системы. На рис. 9.20 приведен чертеж измерительной головки для всех трех систем. Характеристики этих измерительных систем содержатся в табл. 9.5.

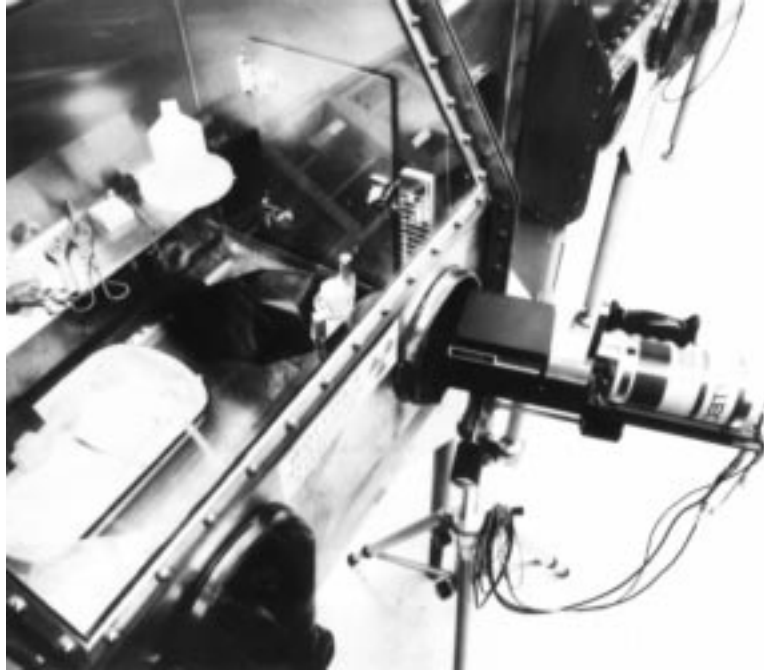


Рис. 9.16. Портативный плотномер по К-краю, установленный для проведения измерений

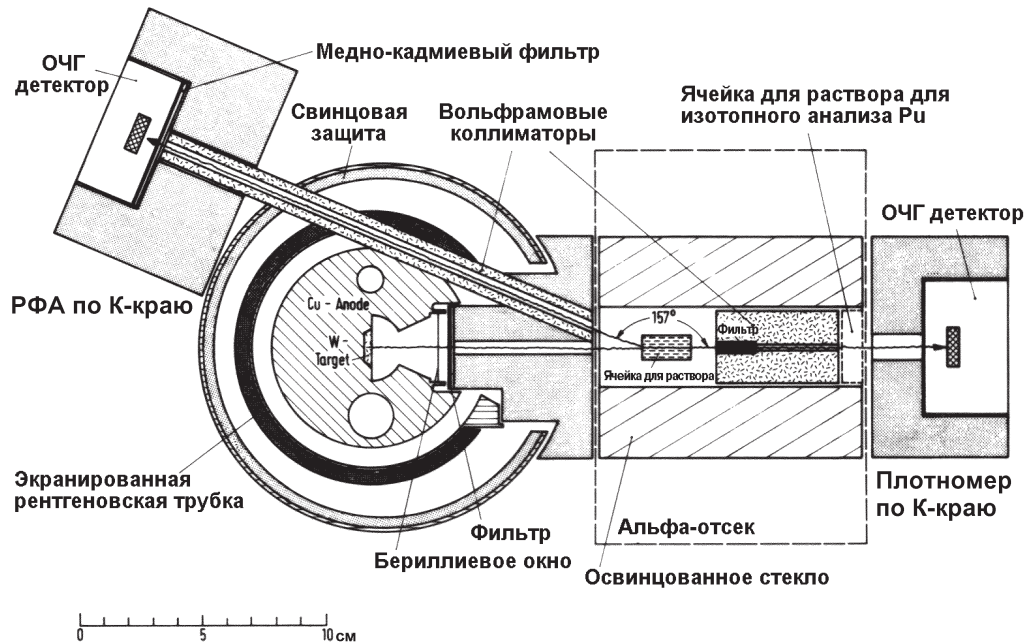


Рис. 9.17. Поперечный разрез комбинированной системы К/К по К-краю и РФА. Размер альфа-отсека стандартного перчаточного бокса показан не в масштабе. Толщина ячейки для образца на пути прохождения излучения равна 2 см



Рис. 9.18. Плотномер К_βК по К-краю, аттестуемый по программе ФРГ поддержки МАГАТЭ

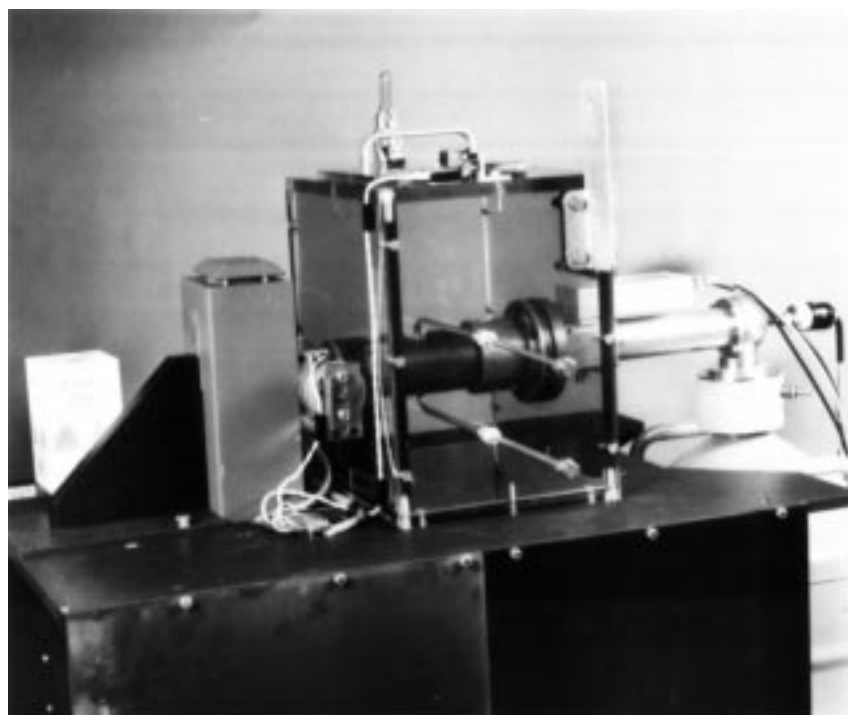


Рис. 9.19. Плотномер АGNS по L_β-краю. Слева направо показаны электроника внутри защитного кожуха, измерительная станция и терминал для распечатки

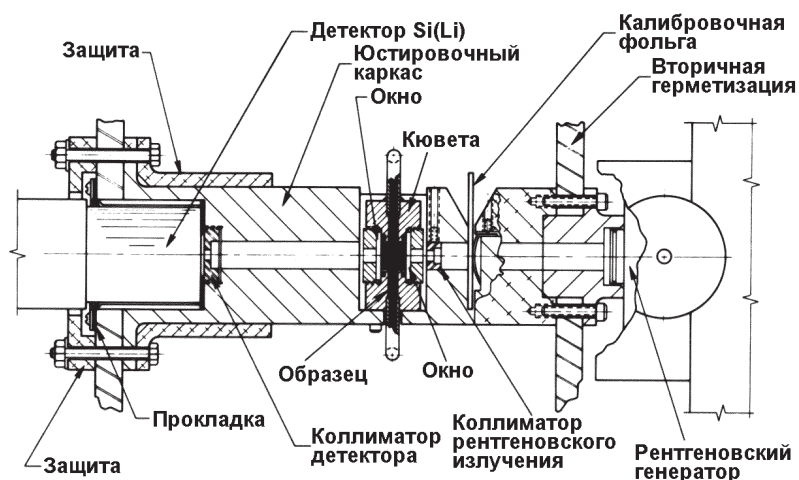


Рис. 9.20. Масштабированный чертеж измерительной головки плотномера по L_{III} -краю для измерительных систем SRL, NBL и AGNS. Проточная кювета показана обрезанной со стороны входной и выходной труб. Закрашенная область показывает раствор в кювете (длина пути прохождения излучения равна 1 см). Материалами для вторичной герметизации, защиты, каркаса, кюветы для образца и коллиматора являются поликарбонат (Lexan™), нержавеющая сталь, алюминий, нержавеющая сталь (с окнами Kel-F™) и латунь, соответственно

1. Саванна-Риверская лаборатория SRL (Savannah River Laboratory) [12, 21, 34]. Плотномер по L_{III} -краю в Саванна-Риверской лаборатории испытывался вместе с демонстрационной установкой для переработки растворов. Проточная кювета из нержавеющей стали (подогнанная к пластмассовым окнам) была установлена в перчаточном боксе, в котором размещалось устройство совместной обработки, таким образом, чтобы раствор из разных точек технологического процесса мог быть введен в ячейку для анализа по L_{III} -краю либо урана, либо плутония, либо обоих вместе. Прибор измерял статические растворы объемом 15 мл в кювете; перед каждым анализом прибор несколько раз промывался раствором. Графики зависимости погрешности анализа, полученной для растворов чистого урана или плутония, от концентрации показаны на рис. 9.21. Система эксплуатировалась на заводе в Саванна-Ривер с 1978 г. по 1980 г.

2. Нью-Брансвикская лаборатория NBL (New Brunswick Laboratory) [35]. Плотномер по L_{III} -краю в Нью-Брансвикской лаборатории Министерства энергетики США в Аргонне был разработан для воспроизведения геометрии измерения и метода анализа измерительной системы Саванна-Риверской лаборатории. Для тщательно контролируемой оценки сходимости и погрешности этой измерительной системы использовались специально приготовленные эталонные растворы урана, плутония и их смеси. На рис. 9.22 сравниваются результаты анализа NBL с эталонными значениями для чистых урановых растворов. Чувствительность к загрязнению матрицы элементами с низким, средним и высоким атомным номером Z проверялась для уровней загрязнения до 10 % по весу ядерного материала. Эта аттестация проходила с 1980 г. по 1981 г.

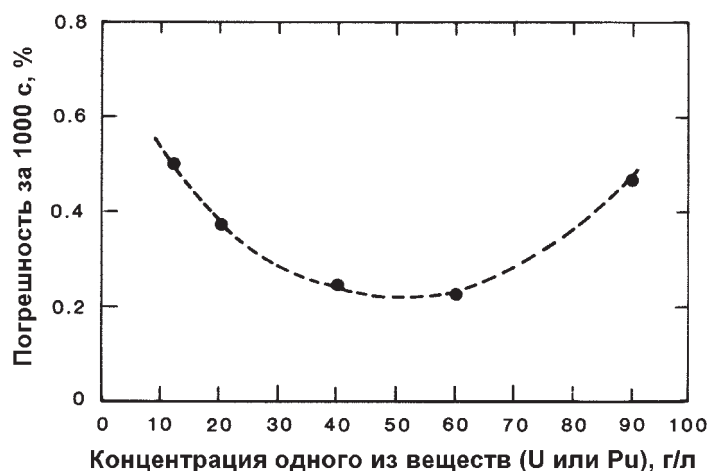


Рис. 9.21. График зависимости погрешности (1σ), полученной измерительной системой SRL за время анализа урана или плутония по L_{III} -краю, равное 1000 с, от концентрации. Пунктирная линия представляет собой стандартное отклонение, рассчитанное на основе счетной статистики с использованием уравнения (9.14)

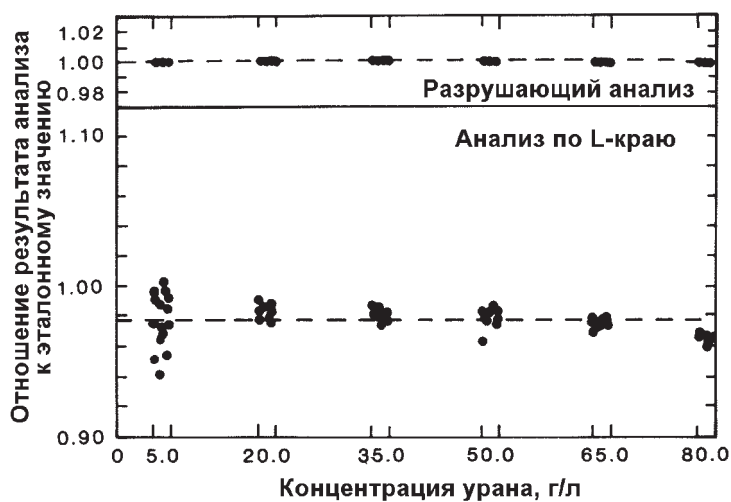


Рис. 9.22. Сравнение результатов анализа по L_{III} -краю за 1000 с образцов растворов, введенных в кювету для образца системы NBL, с результатами разрушающего анализа. Группы из трех точек данных, построенных вертикально, представляют результаты повторных анализов одного и того же образца. Эти данные использовались для градуировки системы NBL

3. Объединенные ядерные службы AGNS (Allied General Nuclear Services) [36]. Плотномер по L_{III} -краю, разработанный для проведения непрерывного анализа концентрации урана в протекающих технологических растворах, испытывался в 1981 г. на Барнуэллской установке AGNS. Проточная кювета из нержавеющей стали была вставлена в трубу, которая непрерывно отбирала пробы потока продукта из экстракционной колонны. Измерительная система работала в течение семи дней без перерыва, выдавая каждые 5 мин результаты измерения кон-

центрации урана и анализируя протекающий раствор от начального уровня (обычно нулевая концентрация урана) до установившегося уровня приблизительно в 40 г/л. Измерительная система автоматически обеспечивала распечатку результатов измерения в реальном масштабе времени компьютера контроля и учета материалов, запрограммированного для подведения баланса материалов в реальном масштабе времени путем снятия показаний с оборудования контроля технологического процесса.

4. Лос-Аламосская национальная лаборатория [37]. Компактный плотномер по L_{III} -краю был испытан в 1984 г. в Лос-Аламосе в группе Q-1 лаборатории гарантий. В этом приборе использовался промышленный генератор рентгеновского излучения, разработанный для портативных применений. На рис. 9.23 по-

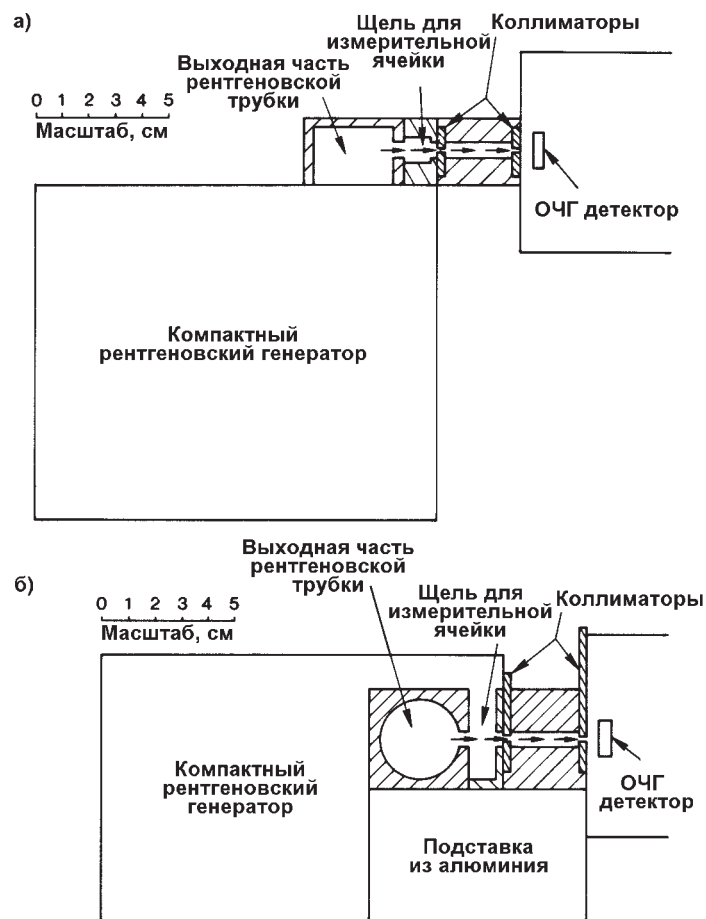


Рис. 9.23. Масштабированный чертеж измерительной головки компактного плотнера по L_{III} -краю: (а) вид сверху в горизонтальной плоскости пути пропускания рентгеновского излучения; (б) вид сбоку. Толщина раствора на пути пропускания равна 1 см

казана измерительная головка плотномера. Хотя для обработки аналогового сигнала, сбора и анализа данных использовался стандартный блок электроники, в Лос-Аламосском плотномере по L-краю мог бы использоваться и портативный многоканальный анализатор, используемый в компактном плотномере по K-краю в Сейберсдорфе (см. раздел 9.7.1). Это позволяет проводить измерения по L_{III}-краю с использованием портативных приборов. Функционирование компактного плотномера с приготовленными эталонными растворами урана было аналогично работе измерительной системы по L_{III}-краю, испытанной ранее.

ЛИТЕРАТУРА

1. T.R. Canada, J.L. Parker, and T.D. Reilly, "Total Plutonium and Uranium Determination by Gamma-Ray Densitometry," *Transactions of the American Nuclear Society* 22,140 (1975).
2. T.R. Canada, D.G. Langner, and J.W. Tape, "Nuclear Safeguards Applications of Energy-Dispersive Absorption-Edge Densitometry," in *Nuclear Safeguards Analysis*, E.A. Hakkila, Ed. (American Chemical Society, Washington, DC, 1978), Series №.79, p.96.
3. T.R. Canada, S.-T. Hsue, D.G. Langner, D.R. Martin, J.L. Parker, T.D. Reilly, and J.W. Tape, "Applications of the Absorption-Edge Densitometry Technique to Solutions and Solids," *Nuclear Materials Management* 6 (3), 702 (1977).
4. R.L. Bramblett, "Passive and Active Measurements of SNM in 55-Gallon Drums," *Nuclear Materials Management* 4, 137 (1975).
5. H.A. Smith, Jr., T. Marks, S.S. Johnson, L.R. Cowder, J.K. Sprinkle, Jr., C.O. Shonrock, R.W. Slice, D.L. Garcia, K.W. MacMurdo, R.L. Pollard, L.B. Baker, P. Christie, and J.P. Clark, "Test and Evaluation of the In-Line Plutonium Solution K-Absorption-Edge Densitometer at the Savannah River Plant: Phase I, Off-Line Testing," Los Alamos National Laboratory report LA-9124-MS (1982).
6. S.-T. Hsue to R.B. Walton, "Densitometry Design," Los Alamos document Q-1-80-243 (May 1980).
7. L.A. Currie, "Limits for Quantitative Detection and Quantitative Determination," *Analytical Chemistry* 40, 586 (1968).
8. C.E. Crouthamel et al., "A Compilation of Gamma-Ray Spectra (NaJ Detector)," in *Applied Gamma-Ray Spectrometry*, F. Adams and R. Dams, Eds. (Pergamon Press, Braunschweig, Hungary, 1970).
9. T.W. Crane, "Detectability Limits and Precision for Shufflers," Los Alamos National Laboratory report LA-10158-MS (1984).
10. E. Storm and H.I. Israel, "Photon Cross Sections from 0.001 to 100 MeV for Elements 1 through 100," Los Alamos Scientific Laboratory report LA-3753 (1967).
11. Handbook of Chemistry and Physics, 55th ed., R.C. Weast, Ed. (Chemical Rubber Company Press, Cleveland, Ohio, 1975).
12. P.A. Russo, S.-T. Hsue, D.G. Langner, and J.K. Sprinkle, Jr., "Nuclear Safeguards Applications of Energy-Dispersive Absorption-Edge Densitometry," *Nuclear Materials Management* 9, 730 (1981).

13. F. Brown, D.R. Terry, J.B. Hornsby, R.G. Monk, F. Morgan, J. Herrington, P.T. Good, K.C. Steed, and V.M. Sinclair, "Application of Instrumental Methods to the Determination of Nuclear Fuel Materials for Safeguards," in *Safeguards Techniques*, Proc. IAEA Karlsruhe Symp. (IAEA, Vienna, Austria, July 1970), Vol. II, p. 125.
14. D.R. Terry and A.P. Dixon, "A Portable Gamma Absorptiometer for Safeguards Use in Nuclear Fuel/Reprocessing Plants," Atomic Weapons Research Establishment report AWRE/44/88/28 Cos 28, Aldermaston, England (1975).
15. J.E. Ayer and D.R. Schmitt, "A Gamma-Ray Absorptiometer for Nuclear Fuel Evaluation," *Nuclear Technology* 27, 442 (1975).
16. T. Gozani, H. Weber, and Y. Segal, "A Gamma-Ray Transmission Gauge for Determination of Heavy and Light Metal Loading of Fuel Elements," *Nuclear Materials Management* 2 (3), 139 (1973).
17. T. Gozani, *Active Nondestructive Assay of Nuclear Materials, Principles and Applications*, NUREG/CR-0602, (US Nuclear Regulatory Commission, Washington DC, 1981), p. 118.
18. G. Bardone, M. Aparo, and F.V. Frazzoli, "Dual-Energy X-Ray Absorptiometry for the Assay of Mixed Special Nuclear Material in Solution," in *Proc. Second Annual Symposium on Safeguards and Nuclear Materials Management*, Edinburgh, Scotland, March 26-28, 1980 (European Safeguards Research and Development Association, Brussels, Belgium, 1980), p. 270.
19. M. Aparo, B. Mattia, F.V. Frazzoli, and P. Zeppa, "Dual-Energy X-Ray Absorptiometer for Nondestructive Assay of Mixed Special Nuclear Material in Solution," in *Proc. Fifth Annual Symposium on Safeguards and Nuclear Materials Management*, Versailles, France, April 19-21, 1983 (European Safeguards Research and Development Association, Brussels, Belgium, 1983), p. 271.
20. J.K. Sprinkle, Jr., H.R. Baxman, D.G. Langner, T.R. Canada, and T.E. Sampson, "The In-Plant Evaluation of a Uranium NDA System," in *Proc. American Nuclear Society Topical Conference on Measurement Technology for Safeguards and Materials Control*, Kiawah Island, South Carolina, November 26-28, 1979 (National Bureau of Standards, Washington, DC, 1980), p. 324.
21. T.R. Canada, J.L. Parker, and P.A. Russo, "Computer-Based In-Plant Nondestructive Assay Instrumentation for the Measurement of Special Nuclear Materials," in *Proc. American Nuclear Society Topical Conference on Computers in Activation Analysis in Gamma-Ray Spectroscopy*, Mayaguez, Puerto Rico. April 30-May 4, 1978 (US DOE Technical Information Center), p. 746.
22. H.H. Hogue and S.E. Smith, "Off-Line Nondestructive Analysis at a Uranium Recovery Facility," in *Safeguards Technology: The Process-Safeguards Interface*, Proc. American Nuclear Society-INMM Topical Conference, Hilton Head Island, South Carolina, November 28-December 2, 1983 (Conf. 831106, 1984).
23. H.H. Hogue and S.E. Smith, "Nondestructive Analysis at the Oak Ridge Y-12 Plant," Oak Ridge Y-12 Plant report Y-2297 (1984).
24. K.J. Hofstetter, G.A. Huff, R. Gunnink, J.E. Evans, and A.L. Prindle, "On-Line Measurement of Total and Isotopic Plutonium Concentrations by Gamma-Ray Spectrometry," in *Analytical Chemistry in Nuclear Fuel Reprocessing*,

- W. S. Lyon, Ed. (Science Press, Princeton, New Jersey, 1978), p. 266, and University of California report UCRL-52220 (1977).
25. K.J. Hofstetter and G.A. Huff, "On-Line Isotopic Concentration Monitor," Allied General Nuclear Services report AGNS-1040-2.3-52 (1978).
 26. L.R. Cowder, S.-T. Hsue, S.S. Johnson, J.L. Parker, P.A. Russo, J.K. Sprinkle, Jr., Y. Asakura, T. Fukuda, and I. Kondo, "An Instrument for the Measurement of Pu Concentration and Isotopics of Product Solutions at Tokai-Mura," in *Proc. Second Annual Symposium on Safeguards and Nuclear Materials Management*, Edinburgh, Scotland, March 26-28, 1980 (European Safeguards Research and Development Association, Brussels, Belgium, 1980), p. 119.
 27. P.A. Russo, S.-T. Hsue, J.K. Sprinkle, Jr., S.S. Johnson, Y. Asakura, I. Kondo, J. Masui, and K. Shoji, "In-Plant Measurements of Gamma-Ray Transmissions for Precise K-Edge and Passive Assay of Plutonium Concentration and Isotopic Fractions in Product Solutions," Los Alamos National Laboratory report LA-9440-MS (1982).
 28. Y. Asakura, I. Kondo, J. Masui, K. Shoji, P.A. Russo, S.-T. Hsue, J.K. Sprinkle, Jr., and S. S. Johnson, "In-Plant Measurements of Gamma-Ray Transmissions for Precise K-Edge and Passive Assay of Plutonium Concentration and Isotopic Abundances in Product Solutions at the Tokai Reprocessing Plant," *Nuclear Materials Management II*, 221 (1982).
 29. H.A. Smith, Jr., T. Marks, L.R. Cowder, C.O. Shonrock, S.S. Johnson, R.W. Slice, J.K. Sprinkle, Jr., K.W. MacMurdo, R.L. Pollard, and L.B. Baker, "Development of In-Line Plutonium Solution NDA Instrumentation at the Savannah River Plant," in *Proc. Second Annual Symposium on Safeguards and Nuclear Materials Management*, Edinburgh, Scotland, March 26-28, 1980 (European Safeguards Research and Development Association, Brussels, Belgium, 1980), p. 123.
 30. L.R. Cowder, S.F. Klosterbuer, R.H. Augustson, A. Esmailpour, R. Hawkins, and E. Kuhn, "A Compact K-Edge Densitometer," in *Proc. Sixth Annual Symposium on Safeguards and Nuclear Materials Management*, Venice, Italy, May 14-18, 1984 (European Safeguards Research and Development Association, Brussels, Belgium, 1984), p. 261.
 31. H. Eberle, P. Matussek, H. Ottmar, I. Michel-Piper, M.R. Iyer, and P.P. Chakraborty, "Nondestructive Elemental and Isotopic Assay of Plutonium and Uranium in Nuclear Materials," *Nuclear Safeguards Technology 1978* (International Atomic Energy Agency, Vienna, Austria, 1979), Vol. II, p. 27.
 32. H. Eberle, P. Matussek, I. Michel-Piper, and H. Ottmar. "Assay of Uranium and Plutonium in Solution by K-Edge Photon Absorptiometry Using a Continuous X-Ray Beam," in *Proc. Second Annual Symposium on Safeguards and Nuclear Materials Management*, Edinburgh, Scotland, March 26-28, 1980 (European Safeguards Research and Development Association, Brussels, Belgium, 1980), p. 372.
 33. H. Eberle, P. Matussek, I. Michel-Piper, and H. Ottmar, "Operational Experience with K-Edge Photon Absorptiometry for Reprocessing Feed and Product Solution Analysis," in *Proc. Third Annual Symposium on Safeguards and Nuclear Materials Management*, Karlsruhe. Fed. Rep. Germany, May 6-8, 1981 (European Safeguards Research and Development Association, Brussels, Belgium, 1981), p. 109.

34. P.A. Russo, T.R. Canada, D.G. Langner, J.W. Tape, S.-T. Hsue, L.R. Cowder, W.C. Moseley, L.W. Reynolds, and M.C. Thompson, "An X-Ray L_{III} -Edge Densitometer for Assay of Mixed SNM Solutions," in *Proc. First Annual Symposium on Safeguards and Nuclear Materials Management*, Brussels, Belgium, April 25-27, 1979 (European Safeguards Research and Development Association, Brussels, Belgium, 1979), p. 235.
35. W.J. McGonnagle, M.K. Holland, C.S. Reynolds, N.M. Trahey, and A.C. Zook, "Evaluation and Calibration of a Los Alamos National Laboratory L_{III} -Edge Densitometer," US Department of Energy New Brunswick Laboratory report NBL-307 (1983).
36. P.A. Russo, T. Marks, M.M. Stephens, A.L. Baker, and D.D. Cobb, "Automated On-Line L-Edge Measurement of SNM Concentration for Near-Real-Time Accounting," Los Alamos National Laboratory report LA-9480-MS (1982).
37. M.L. Brooks, P.A. Russo, and J.K. Sprinkle, Jr., "A Compact L-Edge Densitometer for Uranium Concentration Assay", Los Alamos National Laboratory report LA-10306-MS (1985).

Глава 10

Рентгенофлюоресцентный анализ

*М. С. Миллер
(Переводчик Н.В. Мошкина)*

10.1 ВВЕДЕНИЕ

Возможность использования рентгеновского излучения для качественного и количественного элементного анализа была оценена вскоре после его открытия. В начале для регистрации рентгеновских лучей использовали счетчики Гейгера-Мюллера и тщательно подобранные наборы поглотителей или кристаллические дифракционные решетки. Позднее преимущества полупроводниковых детекторов и соответствующей электроники открыли возможности для широкого использования дисперсионно-энергетического рентгенофлюоресцентного анализа (РФА) для общего элементного анализа.

РФА основан на том, что рентгеновские лучи, испускаемые ионизированным атомом, обладают энергиями, которые являются характерной особенностью элемента. Интенсивность рентгеновского излучения пропорциональна как концентрации элемента, так и мощности ионизирующего источника. Для неразрушающего анализа ядерных материалов наиболее применима фотонная ионизация, которая достигается использованием рентгеновской трубки или радиоизотопного источника. Другие методы ионизации трудно реализуемы из-за больших размеров установок и сложной конструкции источников ионизации.

РФА представляет собой дополнительную методику к плотнотрии (глава 9). В плотнотрии регистрируются фотоны, прошедшие через образец без взаимодействия, в то время как при РФА регистрируется излучение, образованное фотонами, провзаимодействовавшими с материалом образца. Как показано на рис. 10.1, плотнотрия наиболее применима для анализа образцов с высокими концентрациями определяемого элемента, в то время как РФА наиболее пригоден для измерения образцов с более низкими концентрациями элементов.

Литература по РФА включает несколько основных работ [1-4], которые рассматривают основы метода с обширными ссылками на первоисточники и информацией по процедурам поправок на ослабление, а также основы дисперсионно-энергетической и дисперсионно-волновой реализации РФА.

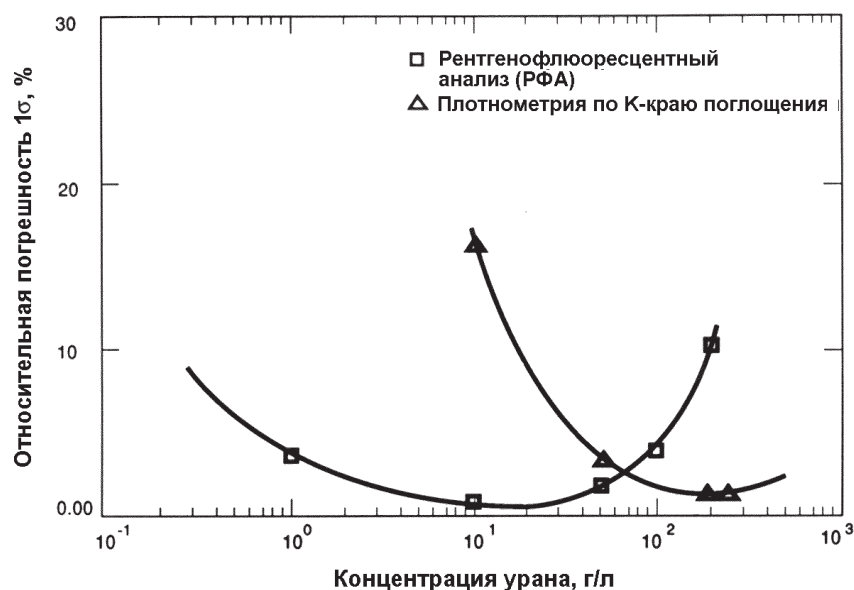


Рис. 10.1. Зависимость погрешности анализа растворов от концентрации урана для типичных измерений РФА (отмечена квадратами) и измерений методом плотнометрии по краю поглощения (отмечена треугольниками)

10.2 ТЕОРИЯ

10.2.1 Образование рентгеновского излучения

Образование рентгеновского излучения кратко описано в разделе 1.3 главы 1. Рентгеновское излучение возникает в результате переходов атомных электронов и является характеристикой элемента. В стабильном атоме электроны занимают дискретные энергетические уровни, которые обозначаются (в порядке убывания энергии связи) К, L₁, L₂, L₃, M₁, ..., M₅, N₁, ..., N₇ и так далее. Энергия связи представляет собой энергию, которая должна быть затрачена для удаления электрона с данной орбиты. Образовавшаяся таким образом вакансия заполняется электроном с внешней орбиты. Результирующая потеря потенциальной энергии может проявиться в виде рентгеновского кванта, энергия которого равна разности энергий связи двух состояний электрона. Например, если из атома урана удаляется К-электрон, а на его место переходит электрон с уровня L₃, энергия испущенного рентгеновского кванта составляет 98,428 кэВ (111,591 кэВ минус 17,163 кэВ). Рентгеновский квант, образованный при этом переходе, обозначается как K_{α1}. Рентгеновские кванты К-серии образуются заполнением внешними электронами вакансий на К-оболочке. Каждый рентгеновский переход имеет соответствующую вероятность или интенсивность. Переход с L₃-уровня на К является самым вероятным, поэтому другие интенсивности обычно выражаются относительно K_{α1}. На рис. 10.2 показаны переходы, в которых образуются рентгеновские кванты наиболее распространенных К- и L-серий. В табл. 10.1 представлены основные К-

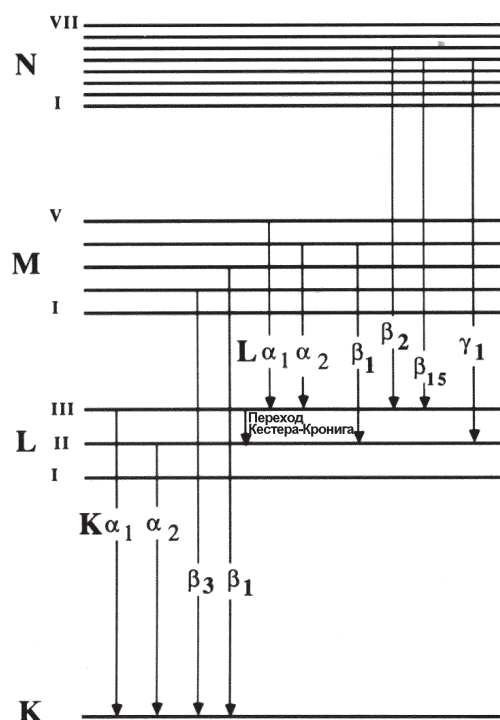


Рис. 10.2. Диаграмма энергетических уровней, показывающая переходы электронов атома с испусканием рентгеновских квантов К- и L-серий

и L-линии урана и плутония вместе с их относительными интенсивностями. На рис. 10.3 и 10.4 показаны К- и L-рентгеновские спектры урана.

10.2.2 Выход флуоресценции

Не всякая ионизация приводит к испусканию рентгеновских квантов. Конкурирующим процессом является эффект Оже. В этом процессе возбужденный атом вновь обретает энергетическую стабильность за счет испускания электрона с внешней оболочки. Отношение числа испущенных рентгеновских квантов к общему числу возбужденных атомов называется выходом флуоресценции ω_i , где i обозначает оболочку, с которой испускается квант. Выход флуоресценции возрастает с атомным номером и составляет более 95 % для рентгеновского излучения К-серии элементов с $Z > 78$ (см. рис. 10.5). Для данного элемента выход флуоресценции уменьшается при переходе от К-серий к L- и М-сериям. Выход флуоресценции может быть приближенно описан следующим выражением [1]:

$$\omega_i = Z^4 / (A_i + Z^4), \quad (10.1)$$

где A_i приблизительно равно 10^6 для К-оболочки и 10^8 для L-оболочки.

10.2.3 Пропускание фотонов

Чтобы удалить электрон с оболочки атома, энергия падающего фотона должна быть больше или равна энергии связи электрона. Например, чтобы возбудить К-электроны плутония, энергия возбуждающего фотона должна быть не менее 121,82 кэВ.

Таблица 10.1 – Энергии и относительные интенсивности основных линий рентгеновского излучения К- и L-серий для урана и плутония

Линия	Переход (конец – начало)	Энергия, кэВ*	
		уран (%)**	плутоний (%)
$K_{\alpha 1}$	$K - L_3$	98,44 (100)	103,76 (100)
$K_{\alpha 2}$	$K - L_2$	94,66 (61,9)	99,55 (62,5)
$K_{\beta 1}$	$K - M_3$	111,31 (22,0)	117,26 (22,2)
$K_{\beta 3}$	$K - M_2$	110,43 (11,6)	116,27 (11,7)
$K_{\beta 2}$	$K - N_{2,3}$	114,34; 114,57 (12,3)	120,44; 120,70 (12,5)
$L_{\alpha 1}$	$L_3 - M_5$	13,62 (100)***	14,28 (100)
$L_{\alpha 2}$	$L_3 - M_4$	13,44 (10)	14,08 (10)
$L_{\beta 2}$	$L_3 - N_5$	16,43 (20)	17,26 (20)
L_{ϵ}	$L_3 - M_1$	11,62 (1-3)	12,12 (1-3)
$L_{\beta 1}$	$L_2 - M_4$	17,22 (50)	18,29 (50)
$L_{\gamma 1}$	$L_2 - N_4$	20,17 (1-10)	21,42 (1-10)
$L_{\beta 3}$	$L_1 - M_3$	17,45 (1-6)	18,54 (1-6)
$L_{\beta 4}$	$L_1 - M_2$	16,58 (3-5)	17,56 (3-5)

* Вычислены по “Таблицам изотопов”, приложение III (L-линии) (С.М. Lederer, and V.S. Shirley, Eds., Table of isotopes, 7th ed. [John Wiley & Sons, Inc., New York, 1978]).

** Отношение интенсивностей либо к $K_{\alpha 1}$, либо к $L_{\alpha 1}$ в процентах.

*** Только приблизительно (из [4]).

Доля фотонов F , которые взаимодействуют с атомными электронами данного материала, определяется по формуле

$$F = 1 - \exp(-\mu x), \quad (10.2)$$

где μ – массовый коэффициент ослабления;

ρ – плотность образца;

x – толщина образца.

Если построить график зависимости массового коэффициента ослабления от энергии фотона для данного элемента, то на нем будут наблюдаться ярко выраженные разрывы, известные, как “края поглощения”. На рис. 10.6 показана зави-

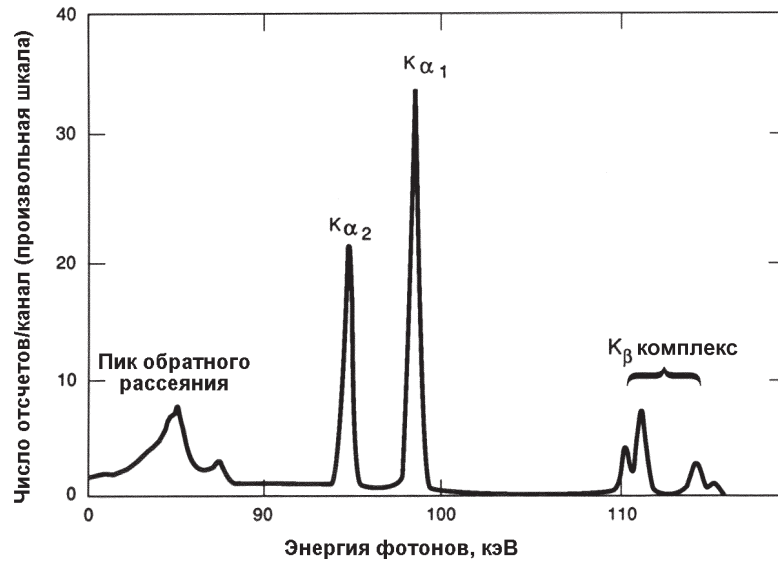


Рис. 10.3. Спектр рентгеновского излучения урана K-серии. Источник возбуждения ^{57}Co

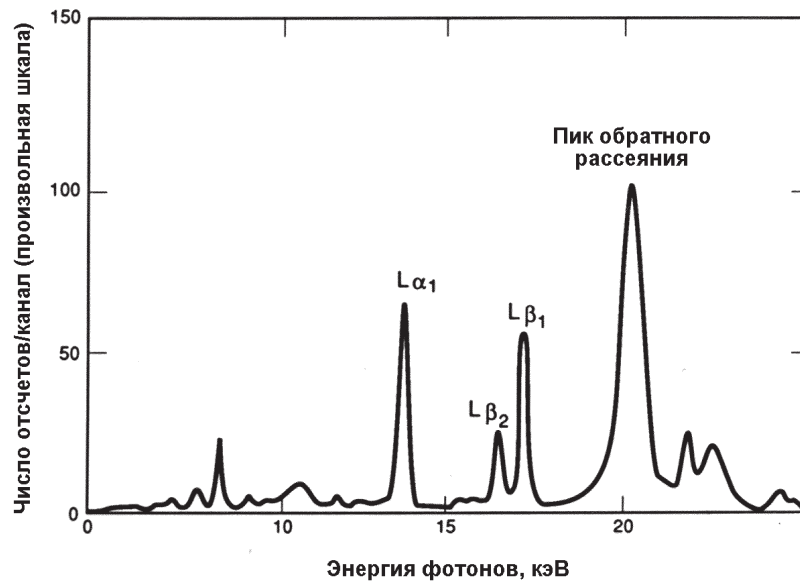


Рис. 10.4. Спектр рентгеновского излучения урана L-серии. Источник возбуждения ^{109}Cd

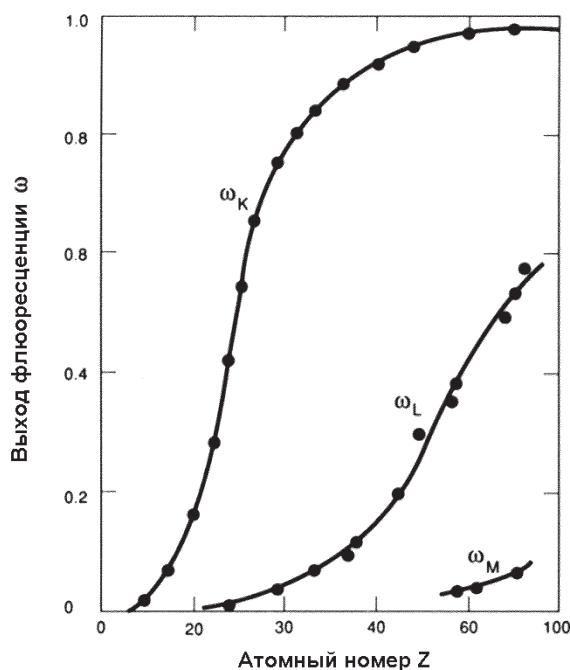


Рис. 10.5. Зависимость выхода флуоресценции для рентгеновского излучения K-, L- и M-серий от атомного номера

симось массового коэффициента ослабления от энергии фотонов для урана и плутония. Наличие края поглощения указывает на резкое уменьшение сечения фотоэффекта для энергий падающих фотонов в области ниже энергии связи данного состояния электрона. Фотоэлектрическое взаимодействие является основным процессом, приводящим к образованию рентгеновского излучения при возбуждении фотонным излучением.

Ослабление ограничивает размер образца, который может быть проанализирован методиками пропускания рентгеновского излучения. На рис. 10.7 показаны средние длины свободного пробега фотонов с энергиями 400, 100 и 20 кэВ в воде и в растворе урана с концентрацией 50 г/л. В основном методики пропускания применимы для образцов, толщина которых меньше 4 или 5 средних длин свободного пробега.

Уравнение (10.2) полезно для сравнения K- и L-рентгенофлуоресценции. Для L-рентгенофлуоресценции μ больше, и потому взаимодействие возбуждающего потока с образцом сильнее. Для K-рентгенофлуоресценции μ меньше и, следовательно, ослабление как возбуждающих фотонов, так и рентгеновского излучения меньше (относительно L-рентгенофлуоресценции). Эта разность в эффектах ослабления приводит к тому, что L-рентгенофлуоресценция обладает большей чувствительностью (образуется больше рентгеновских квантов на единицу возбуждающего потока и площади поперечного сечения), чем K-рентгенофлуоресценция. С другой стороны, K-рентгенофлуоресценция допускает большую гибкость в отношении выбора контейнера для образца и примесных поглотителей.

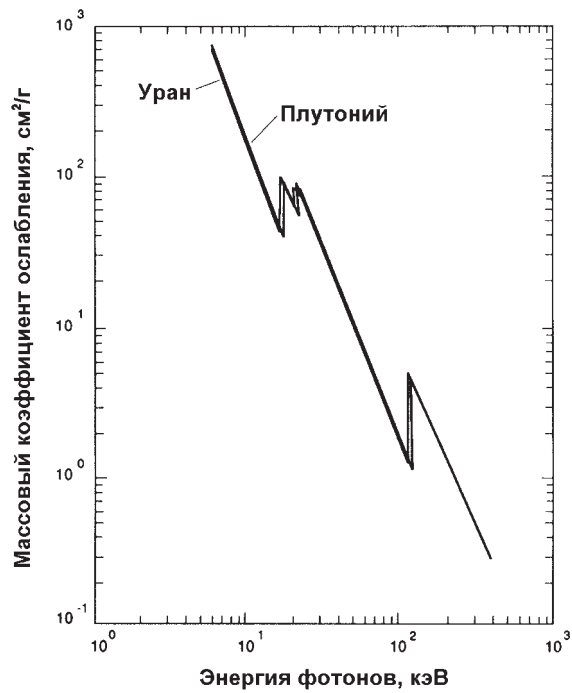


Рис. 10.6. Зависимость массового коэффициента ослабления от энергии для урана и плутония

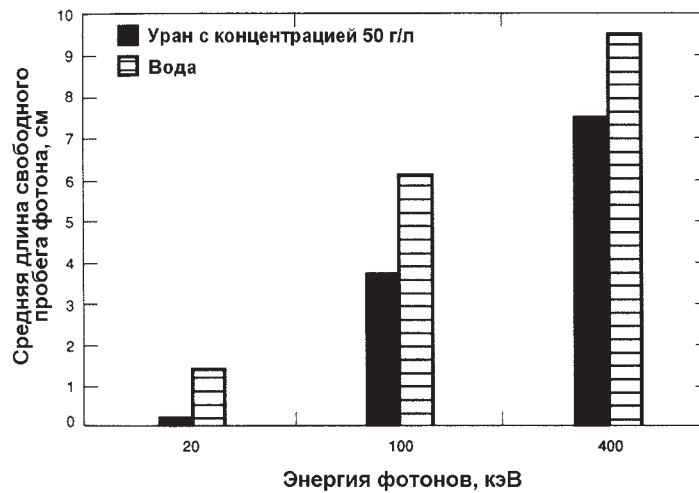


Рис. 10.7. Средняя длина свободного пробега фотонов с энергиями 400, 100 и 20 кэВ в воде ($\rho = 1 \text{ г/см}^3$) и растворе урана с концентрацией 50 г/л

10.2.4 Геометрия измерений

Выбор геометрии очень важен для систем РФА. Хотя основной интерес представляют фотоэлектрические взаимодействия возбуждающих фотонов с атомами анализируемого элемента, необходимо рассмотреть и другие процессы, в частности, эффект обратного комптоновского рассеяния. Энергия гамма-кванта, рассеянного за счет комптоновского эффекта, равна (см. раздел 2.3.2 главы 2 и [5])

$$E' = \frac{511}{(1 - \cos\phi + 511/E)}, \quad (10.3)$$

где E' , E — энергия рассеянного и падающего фотона, соответственно, кэВ;
 ϕ — угол между падающим и рассеянным фотонами.

Энергия E' минимальна при $\phi = 180^\circ$, и фотоны, рассеянные под этим углом или с небольшим отклонением от этого угла, могут образовать в измеренном спектре пик обратного рассеяния. Для фотонов с энергией 122 кэВ от ^{57}Co (подходящий источник для К-РФА урана или плутония) пик обратного рассеяния находится при энергии 82,6 кэВ. Если угол рассеяния ϕ равен 90° , E' равна 98,5 кэВ и находится в середине спектра рентгеновского излучения К-серии урана и плутония. Если в качестве источника возбуждения используется ^{57}Co , геометрию измерения следует выбирать таким образом, чтобы угол ϕ был близок к 180° для большинства рассеянных гамма-квантов, достигающих детектора. При такой геометрии пик обратного рассеяния и непрерывный комптоновский спектр рассеянных фотонов находятся ниже области характеристического рентгеновского излучения, что минимизирует фон под фотопиками рентгеновского излучения (см. рис. 10.3). Такую геометрию измерений обеспечивает использование кольцевого источника, описанного ниже в этой главе. Для рентгеновских квантов L-серии геометрия измерений не так критична, поскольку энергия $E'(180^\circ)$ равна 20,3 кэВ для рентгеновских квантов серебра с энергией 22 кэВ от источника ^{109}Cd (хороший L-РФА источник для урана), и пик обратного рассеяния находится выше рассматриваемой области рентгеновского излучения. Для минимизации величины пика обратного рассеяния необходимо тщательно контролировать рассеивающие материалы вблизи детектора. Некоторые исследователи [6] используют источники возбуждения с энергиями, значительно превышающими рассматриваемую энергию связи, минимизируя посредством этого эффекты рассеяния в спектральной области падающих рентгеновских квантов. Такой подход требует использования источников возбуждения с более высокой интенсивностью (на порядок или больше) для создания достаточной активности рентгеновского излучения.

Для уменьшения потерь за счет мертвого времени и наложений импульсов детектор должен быть экранирован от источника возбуждения и другого фонового излучения. Для ограничения влияния нежелательных источников обычно используется коллимация детектора. Для стабилизации отклика рентгеновского излучения относительные положения источника, образца и детектора должны быть жестко фиксированы; часто эти компоненты объединены в единую конструкцию. На рис. 10.8 показана возможная геометрия для проведения РФА с поправкой на пропускание.

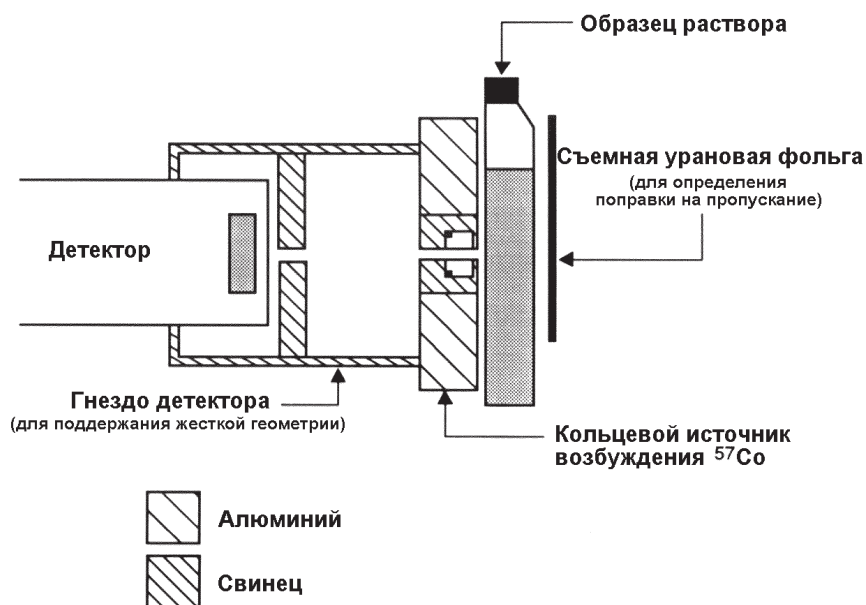


Рис. 10.8. Поперечный разрез установки для анализа с поправкой на пропускание при использовании кольцевого источника возбуждения

10.3 ТИПЫ ИСТОЧНИКОВ

Обычно используются два типа источников: дискретные источники гамма- или рентгеновского излучения или непрерывные источники, такие как генераторы рентгеновского излучения. Каждый из них имеет свои преимущества и недостатки. При выборе подходящего источника учитываются тип, энергия и мощность. Наиболее эффективно выбрать источник, энергия которого выше, но, насколько возможно, близка к рассматриваемому краю поглощения. Как видно из графика зависимости μ от энергии фотона на рис. 10.6, значение коэффициента массового ослабления является наибольшим сразу над краем поглощения.

Кобальт-57 испускает гамма-кванты с энергией 122 кэВ, которая является наиболее эффективной для ионизации К-оболочки урана или плутония. Рентгеновские генераторы пригодны для К-РФА урана и плутония, но они слишком громоздки для задач, в которых требуется портативное оборудование. Хорошим дискретным источником для L-РФА урана и плутония является ^{109}Cd , который испускает рентгеновские кванты К-линии серебра (энергия $K_{\alpha 1} = 22$ кэВ). Для задач с портативным оборудованием, в которых требуются фотоны в области энергий 25 кэВ, имеются малогабаритные рентгеновские генераторы.

Дискретные линейные источники имеют небольшие размеры, чрезвычайно стабильны и просты в эксплуатации, что делает их привлекательными для множества различных применений РФА. Основным их недостатком является то, что с течением времени они распадаются и требуют периодической замены. Двумя

наиболее широко используемыми источниками являются ^{57}Co и ^{109}Cd , которые имеют периоды полураспада 272 и 453 дня, соответственно. Другим недостатком является то, что дискретные радиоизотопные источники нельзя отключить, что вызывает трудности при их транспортировке и обращении с ними. Так как активность источника часто бывает равной 1 мКи или выше, персонал и детектор должны быть тщательно защищены. В табл. 10.2 перечислены некоторые радиоизотопы, которые могут использоваться для РФА урана и плутония. Обычно используется геометрия кольцевого источника, показанного на рис. 10.9, поскольку она экранирует детектор от источника возбуждения и минимизирует влияние обратного рассеяния.

Таблица 10.2 – Источники возбуждения, применяемые для анализа урана и плутония

Радиоизотоп	Период полураспада	Способ распада	Используемые излучения	
			тип	энергия, кэВ
^{57}Co	270 дней	Электронный захват	Гамма-кванты	122
			Гамма-кванты	136
^{109}Cd	453 дня	Электронный захват	Рентгеновские кванты К-линии Ag	22
			Гамма-кванты	121
^{144}Ce	285 дней	Бета-распад	Гамма-кванты	136
			Рентгеновские кванты К-линии Pt	36
^{125}I	60 дней	Электронный захват	Гамма-кванты	134
			Рентгеновские кванты К-линии Te	27
$^{147}\text{Pm-Al}$	2,6 лет	Бета-распад	Гамма-кванты	35
			Непрерывный спектр	12-45*

* Конечная точка тормозного спектра.

Рентгеновские генераторы образуют тормозное излучение в процессе испарения электронов (термоэлектронной эмиссии) с нити накаливания, ускорения и бомбардировки электронами мишени. Из-за необходимости высоковольтного питания и устройств отвода образующегося в мишени тепла, рентгеновские генераторы могут быть довольно громоздкими, особенно при высоких рабочих напряжениях. Имеются небольшие генераторы, работающие в области энергий ниже 70 кэВ, и портативные генераторы с номинальной мощностью до 50 Вт, которые не требуют сложных охлаждающих систем. Для заданной номинальной мощно-

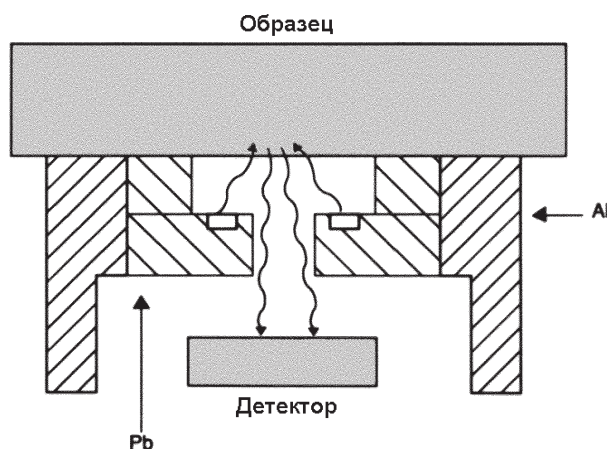


Рис. 10.9. Кольцевой источник возбуждения

сти максимальное рабочее напряжение достигается использованием более низкого тока.

Спектр рентгеновского генератора охватывает область энергий от значения ускоряющего потенциала генератора до края пропускания окна рентгеновского излучения. Форма этого распределения $I(E)$ и полная интенсивность I приводятся в работе [4]:

$$\begin{aligned} I(E) &\propto iZ(V - E)E, \\ I &\propto iZV^2, \end{aligned} \quad (10.4)$$

где i — ток трубки;

V — рабочее напряжение;

Z — атомный номер мишени.

На рис. 10.10 показан выходной спектр рентгеновского генератора. В дополнение к непрерывному спектру образуется характеристическое рентгеновское излучение материала мишени. Эти рентгеновские кванты могут вызывать интерференцию, которая может быть устранена с помощью фильтров. Выбранный фильтр должен иметь край поглощения чуть ниже энергии, которая должна быть ослаблена.

Рентгеновские генераторы могут включаться и отключаться, а их энергетическое распределение и интенсивность — изменяться по желанию. Обычно они представляют более интенсивный источник фотонов, чем радиоизотопные источники ($\sim 10^{12}$ фотонов/с или более). Однако их использование возможно только в случае простоты и компактности. Поскольку рентгеновский генератор представляет собой электрический прибор, возможны проблемы обслуживания и некоторые неполадки в системе. Точность анализа определяется стабильностью рентгеновской трубки. Современные генераторы имеют нестабильность менее 0,1 % в течение короткого срока работы и от 0,2 до 0,3 % в течение длительного срока ра-

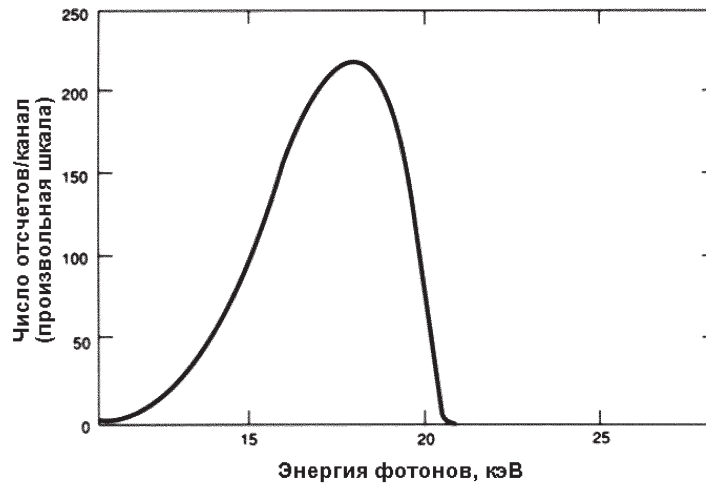


Рис. 10.10. Типичный спектр рентгеновского генератора. Материал мишени генератора — вольфрам, рабочее напряжение — 20,4 кВ

боты. На рис. 10.11 показаны два различных портативных рентгеновских генератора.

Для РФА могут использоваться и другие источники. Источники вторичной флюоресценции используют первичный источник фотонов для возбуждения характеристических рентгеновских квантов мишени, а затем рентгеновские кванты мишени, в свою очередь, используются для возбуждения анализируемого образца. Первичный источник возбуждения может быть дискретным или непрерывным. По этой схеме может быть получено большое разнообразие моноэнергетических возбуждающих фотонов, в зависимости от материала мишени. Основным недостатком является необходимость высокой интенсивности первичного источника. Если первичный источник является радиоизотопом, очень важным может оказаться вопрос радиационной безопасности. Возможно создавать источник

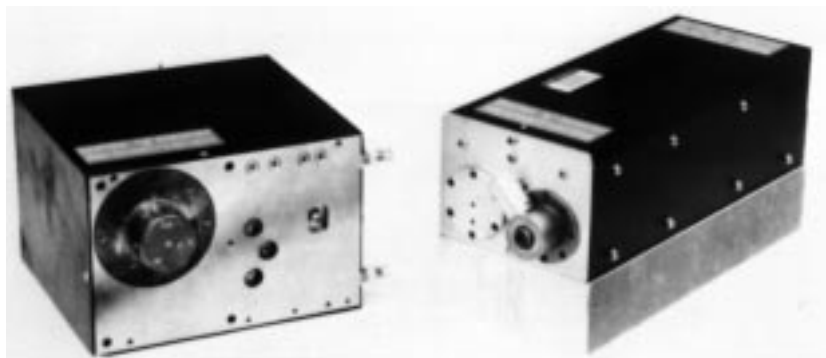


Рис. 10.11. Портативные рентгеновские генераторы

тормозного излучения, используя радиоизотопы, а не рентгеновский генератор. Такой источник состоит из изотопа, распадающегося с испусканием бета-излучения, смешанного с материалом мишени (например, $^{147}\text{Pm-Al}$, где алюминий — материал мишени).

10.4 ПОПРАВКА НА ОСЛАБЛЕНИЕ В ОБРАЗЦЕ

10.4.1 Эффекты ослабления в образце

Как и в пассивном гамма-анализе, основным ограничением точности рентгенофлуоресцентного анализа является ослабление в образце. Для рентгеновских квантов, покидающих образец, а также для гамма- или рентгеновских квантов от источника возбуждения требуется поправка на ослабление. Рентгенофлуоресцентный анализ не подходит для твердых образцов больших размеров, поскольку ослабление слишком велико для точной обработки с помощью какой-либо процедуры коррекции. Например, средняя длина свободного пробега гамма-квантов с энергией 122 кэВ в металлическом уране составляет приблизительно 0,013 см. Низкая проникающая способность этого излучения означает, что с приемлемой точностью РФА может применяться только в случае гомогенного образца. Это ограничение еще более справедливо для L-РФА, использующего фотоны с энергией 22 кэВ. Рентгеновская флуоресценция может применяться для точного анализа разбавленных растворов урана, т.к. средняя длина свободного пробега фотонов в воде приблизительно равна 6,4 см при энергии 122 кэВ и 1,7 см при энергии 22 кэВ. Поскольку энергия источника возбуждения выше края поглощения, а

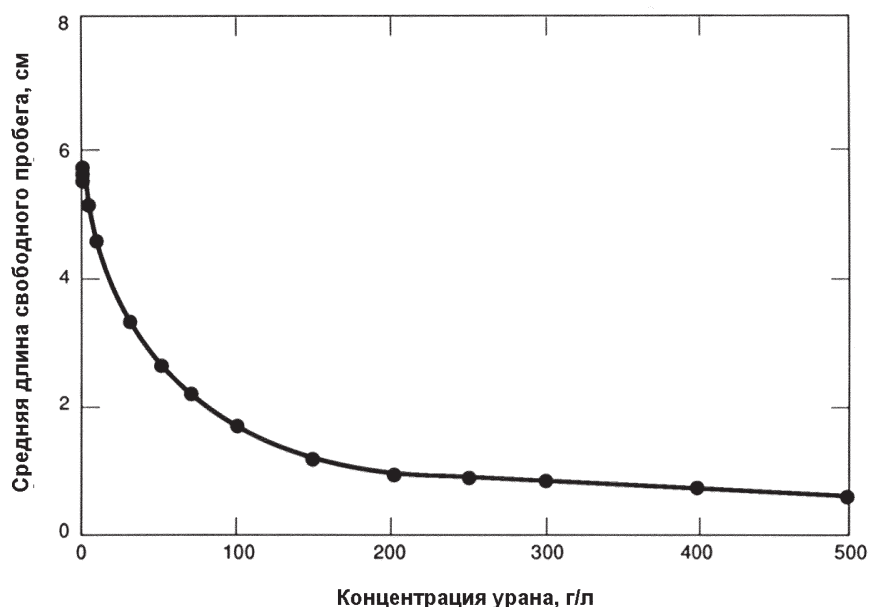


Рис. 10.12. Зависимость длины свободного пробега фотонов с энергией 122 кэВ от концентрации урана (уранилнитрат в 4-молярном растворе азотной кислоты)

энергии характеристических рентгеновских квантов чуть ниже края поглощения, ослабление возбуждающего излучения сильнее и определяет диапазон толщин образца, которые могут быть точно проанализированы. На рис. 10.12 построена зависимость средней длины свободного пробега гамма-квантов с энергией 122 кэВ от концентрации урана (уранилнитрат в 4-молярном растворе азотной кислоты).

Ослабление также влияет на выбор контейнеров для образцов. Поскольку энергия рентгеновских квантов К-линии урана и плутония находится в области 100 кэВ, допустимо использование металлических контейнеров, и К-РФА может применяться для измерений на потоке. Однако рентгеновские кванты L-серии сильно ослабляются контейнерами даже из тонкого металла и могут быть измерены только в контейнерах из элементов с низким атомным номером, таких как пластмасса или стекло.

10.4.2 Основное уравнение анализа

Для осуществления количественного анализа необходимо установить связь между скоростью испускания рентгеновских квантов и концентрацией элемента. Требуемым соотношением, как показано в разделе 5.4.1 главы 5, является:

$$\rho = \frac{RR \times CF(RL) \times CF(AT)}{K}, \quad (10.5)$$

где ρ — концентрация элемента;

RR — исходная скорость регистрации рентгеновских квантов;

CF(RL) — коэффициент поправки на просчеты;

CF(AT) — коэффициент поправки на ослабление;

K — градуировочная постоянная.

Коэффициент CF(RL) может быть определен нормировкой с использованием импульсного генератора или радиоизотопа (см. раздел 5.4 главы 5). Поправка на ослабление имеет две составные части, одна — для возбуждающего излучения, а другая — для флюоресцентных рентгеновских квантов.

Рассмотрим дальнюю геометрию измерения, при которой образец аппроксимируется пластиной, а источник возбуждения является моноэнергетическим (см. рис. 10.13). Значение потока F_γ возбуждающих фотонов на глубине x дается выражением

$$F_\gamma = I_\gamma \exp(-\mu^\gamma x / \cos \phi). \quad (10.6)$$

Переменные в уравнениях (10.6) — (10.10) приведены в табл. 10.3. Число возбуждающих фотонов, взаимодействующих в объеме dx и создающих рентгеновское излучение $K_{\alpha 1}$ -серии, равно

$$F_x dx = F_\gamma \tau \rho \omega B \frac{dx}{\cos \phi}. \quad (10.7)$$

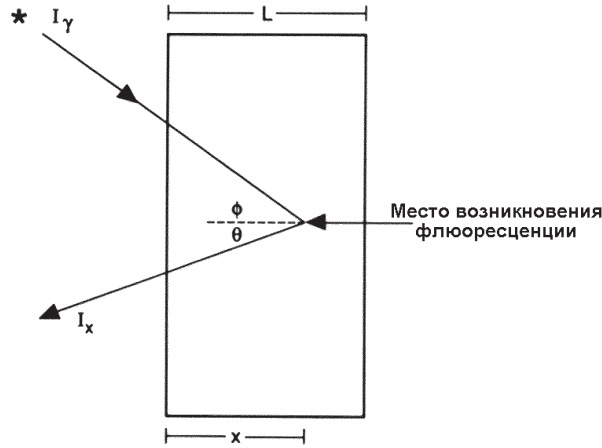


Рис. 10.13. Плоская геометрия РФА

Рентгеновские кванты флюоресценции ослабляются в образце согласно формуле

$$F_x (\text{выход}) = F_x \exp(-\mu^x x / \cos \theta). \quad (10.8)$$

Объединение и интегрирование уравнений (10.6) – (10.8) дает следующее выражение для интенсивности рентгеновского излучения на поверхности детектора:

$$I_x = \frac{I_\gamma \tau \rho \omega B \Omega}{4\pi[(\cos \theta / \cos \phi) \mu^\gamma + \mu^x]} \left\{ 1 - \exp \left[- \left(\frac{\mu^\gamma}{\cos \phi} + \frac{\mu^x}{\cos \theta} \right) L \right] \right\}. \quad (10.9)$$

Коэффициент $(\Omega/4\pi) \cos \phi / \cos \theta$ является нормировочным. Если в качестве источника возбуждения используется генератор рентгеновского излучения, уравнение (10.9) должно быть проинтегрировано от энергии края поглощения до максимальной энергии генератора.

Когда образец является бесконечно толстым для рассматриваемого излучения, уравнение (10.9) принимает вид

$$I_x = \frac{I_\gamma \tau \rho \omega B \Omega}{4\pi[(\cos \theta / \cos \phi) \mu^\gamma + \mu^x]}. \quad (10.10)$$

Данное уравнение аналогично уравнению для измерителя обогащения (см. главу 7). Этот результат очень важен для РФА, т.к. он предполагает, что интенсивность рентгеновского излучения прямо пропорциональна концентрации флюоресцирующего элемента.

В плутонии и высокообогащенном уране самовозбуждение рентгеновского излучения пассивными гамма-квантами может затруднять проведение анализа. Для смешанных уран/плутониевых материалов преобладающим откликом детектора являются пассивные рентгеновские кванты от альфа-распада плутония. Когда возбуждающий источник может воздействовать как на плутоний, так и на

уран (как, например, ^{57}Co и ^{109}Cd), дополнительная флюоресценция урана вызывается рентгеновским излучением плутония. Для введения поправки на эту интерференцию обычно необходим отдельный пассивный счет.

Таблица 10.3 – Переменные в уравнениях (10.6) – (10.10)

I_0	поток возбуждающего излучения на поверхности образца
τ	сечение фотоэлектрического эффекта на К-оболочке для энергии γ -кванта
ρ	концентрация элемента s
ω	выход К-флюоресценции
B	коэффициент ветвления для $K_{\alpha 1}$
Ω	телесный угол детектора
$\mu^{\gamma} = \sum \mu_i^{\gamma} \rho_i$	линейный коэффициент ослабления энергии γ -кванта для i-го элемента
$\mu^x = \sum \mu_i^x \rho_i$	линейный коэффициент ослабления энергии рентгеновского кванта для i-го элемента
ϕ	угол падения возбуждающего излучения
θ	угол выхода рентгеновского кванта
L	толщина пластины

10.4.3 Методы поправки на ослабление

Наиболее точные методы РФА учитывают ослабление в образце. Простейший подход использует градуировочные кривые, полученные с использованием стандартных образцов со сходным химическим составом. Метод эффективен только, если стандартные образцы хорошо охарактеризованы, химически совпадают с исследуемыми образцами и охватывают анализируемую область концентраций в достаточном количестве для построения градуировочной кривой. Изменения в составе матрицы могут потребовать переградуировку с новыми стандартными образцами.

Процедурой, менее чувствительной к изменениям матрицы, является анализ с поправкой на пропускание [7-9], в котором для поправки на ослабление производится измерение коэффициента пропускания для каждого образца. Рассмотрим поправку на ослабление для ситуации, представленной на рис. 10.13 (предполагая, что $\theta = 0$). Выражение для CF(AT) имеет функциональную зависимость для пластины, которая обсуждалась в главе 6:

$$\text{CF(AT)} = \frac{-\ln \alpha}{1 - \alpha}, \quad (10.11)$$

где $\alpha = \exp\left[-\left(\frac{\mu^{\gamma}}{\cos\phi} + \mu^x\right)L\right]$.

Измерение коэффициента пропускания возбуждающего и флюоресцентного рентгеновского излучения может быть использовано для определения α . В этом методе фольга из измеряемого элемента помещается сзади образца и измеряется сигнал возбужденного рентгеновского излучения в присутствии и при отсутствии образца. Проводится дополнительное измерение (см. рис. 10.14) только с образцом (без фольги), и вычисляется α по формуле

$$\alpha = \frac{I_T - I_S}{I_0}, \quad (10.12)$$

где I_T — интенсивность флюоресцентного рентгеновского излучения с фольгой и образцом;

I_S — интенсивность флюоресцентного рентгеновского излучения только с образцом;

I_0 — интенсивность флюоресцентного рентгеновского излучения только с фольгой.

В этом измерении определяется ослабление излучения возбуждающего источника и сигнал от возбужденного рентгеновского излучения. Хотя существуют некоторые преимущества использования в пропускающей фольге того же элемента, что и анализируемый, возможно использование и других элементов, если их характеристическое рентгеновское излучение достаточно близко к характери-

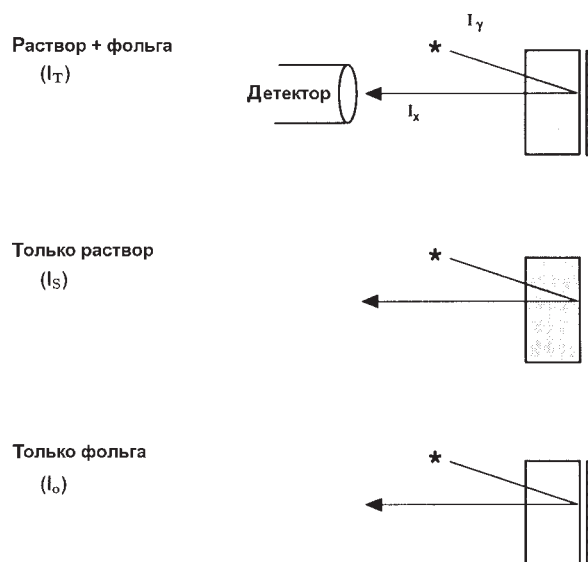


Рис. 10.14. Схема трех измерений, необходимых для определения коэффициента пропускания для РФА растворов урана

стическому рентгеновскому излучению анализируемого элемента. Например, при измерении растворов урана успешно используется металлический торий.

Для оценки градуировочной постоянной K в уравнении (10.5) необходимо соответствующее число стандартных образцов. Уравнения (10.11) и (10.12) точны только для дальней геометрии, а большинство измерений РФА выполняются в ближней геометрии. Следовательно, даже с введением поправок на просчеты и ослабление в образце, для оценки градуировочной постоянной важно использовать несколько стандартных образцов.

10.5 ОБЛАСТИ ПРИМЕНЕНИЯ И АППАРАТУРА

Аппаратура, используемая в РФА, подобна аппаратуре других систем анализа гамма-излучения: детектор, соответствующая электроника, многоканальный анализатор и источник возбуждения. Это оборудование подробно обсуждается в главе 4.

РФА используется в лабораториях аналитической химии в течение многих лет. В большинстве случаев в качестве источника возбуждения используется рентгеновский генератор, а не радиоизотопы. Измеряются элементы с атомными номерами от низких до средних, и ключевым фактором в анализе является подготовка образца. Во многих методиках необходимо, чтобы образец был гомогенизирован и спрессован перед анализом. В случаях, когда существует возможность оптимизации образца, чувствительность РФА может быть очень высока. Правильные и точные результаты с чувствительностью в несколько наногرامмов [1] могут быть получены при малых временах измерения (<1000 с). Коммерчески доступны полностью укомплектованные системы РФА.

Для материалов, содержащих уран или плутоний, используются несколько методик измерений РФА. Джон и др. [10] используют для возбуждения рентгеновских квантов урана в растворах источник ^{57}Co и одновременно регистрируют гамма-кванты ^{235}U с энергией 185,7 кэВ в качестве меры обогащения. Было обнаружено, что отношение интенсивности испускания флюоресцентного рентгеновского излучения к интенсивности гамма-излучения с энергией 185,7 кэВ не зависит от концентрации урана в диапазоне от 8 до 20 г/л для ряда обогащений по ^{235}U в диапазоне от 0,4 до 4,5 %. Сообщалось о погрешности меньше 1 %.

Роусон и Гонтзеас [11] предложили использовать для измерения урановых руд поправку на ослабление в образце, основанную на комптоновском рассеянии. Для возбуждения характеристических рентгеновских квантов от молибденовой фольги (~17,4 кэВ), использовался кольцевой источник ^{241}Am с активностью 50 мКи, который может возбуждать в уране только L_{III} -подоболочку. Это значительно упрощает L-рентгеновский спектр. Поправки на матрицу были определены из отношения обратного рассеяния излучения молибдена K_{α} -серии к рентгеновскому излучению урана L_{α} -серии. Канада и Сью [12] представили хорошее теоретическое описание этого метода и предложения по его улучшению, включающие дополнительные отношения с использованием K_{β} - или L_{β} -линий для дальнейшей минимизации эффектов матрицы.

Баба и Муто [13] использовали рентгеновский генератор для возбуждения L-рентгеновского спектра растворов, содержащих уран и плутоний. Для определения поправки на ослабление в матрице был использован метод внутреннего

стандарта. Известное и постоянное количество нитрата свинца было добавлено ко всем растворам, а интенсивность рентгеновского излучения L-серии урана или плутония была нормирована на интенсивность рентгеновского излучения свинца L_α-серии. Была получена линейная градуировка (в пределах 1 % для урана и 2 % для плутония) для времени измерения 200 с. Концентрации растворов варьировались от 0,1 до 200 г/л для урана и до 50 г/л для плутония. Также измерялись смешанные уран-плутониевые растворы.

Караманова [14] исследовала использование рентгеновской флюоресценции, вызванной бета-частицами, в дополнение к возбуждению гамма-излучением при К-РФА урана и смешанных оксидов урана с торием. Для возбуждения гамма-излучением был применен источник ⁵⁷Со, а для флюоресценции, вызванной бета-частицами, использовался источник ⁹⁰Sr-⁹⁰Y. Поскольку сечения ослабления для матрицы и тяжелого элемента при возбуждении бета-частицами примерно равны, то объем образца постоянен, а результирующий рентгеновский сигнал пропорционален концентрации анализируемого элемента. Сходимость результатов измерений образцов с концентрациями урана от 0,5 до 88 % составила около 0,1 %.

Несколько исследователей провели измерения растворов предприятий по переработке отработавшего ядерного топлива. Эти растворы могут содержать продукты деления и иметь высокие отношения U/Pu, затрудняя их анализ пассивными методиками. Для них необходимо либо химическое разделение, либо чувствительная методика, такая как РФА. Пиклес и Кейт [15] использовали РФА с применением рентгеновского генератора. Образцы с отношениями U/Pu до 400 и активностями продуктов деления 2 Ки/г были проанализированы со схожимостью результатов около 1 % и с погрешностью 2 % в диапазоне масс от 1 до 58 мкг при времени измерения 10 мин. Для минимизации ослабления в образце, образцы растворов были выпарены на тонкую поликарбонатную пленку. На рис. 10.15 показана компоновка оборудования. В измерительной полости титановые пластины размещались на обеих сторонах подложки образца. Рентгеновские кванты титана обеспечивали поправку на потери скорости счета. Для уменьшения пассивного сигнала на детекторе использовались магнитные ловушки бета-частиц и свинцовый коллиматор.

Кемп и др. [16 и 17] использовали источник ⁵⁷Со для возбуждения рентгеновских квантов K-серии урана и плутония в технологических потоках продукта радиохимического производства. Полные концентрации тяжелых элементов от 1 до 200 г/л были проанализированы с использованием нелинейной градуировки в виде полинома. Для поправки на самоослабление используются некогерентно рассеянные гамма-кванты с энергией 122 кэВ от ⁵⁷Со [16] или реальные измерения коэффициента пропускания с использованием гамма-квантов с энергией 122 кэВ [17]. Для определения поправки на пассивное (фоновое) испускание рентгеновского излучения (излучения, возбуждаемого гамма-квантами, образующимся в результате альфа-распада, — прим. ред.) в образцах, содержащих как уран, так и плутоний, осуществляется пассивное измерение.

Эндрю и др. [18] исследовали возможность измерения растворов урана и урана с торием с концентрациями урана от 10 до 540 г/л. Для растворов, содержащих как уран, так и торий, погрешность определения отношения концентраций U/Th составляла 0,4 %. Неопределенности в измерениях концентраций составили 0,5 % для растворов с одним элементом и 1 % — для смешанных растворов. В этой рабо-

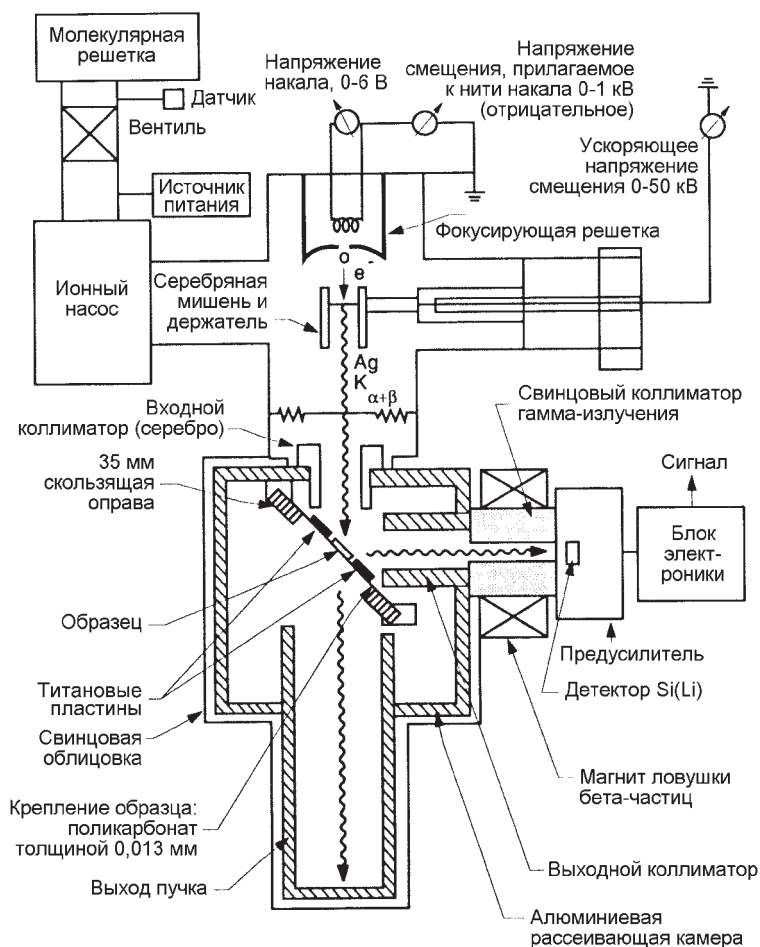


Рис. 10.15. Блок-схема измерительной установки, используемой Пиклесом и Кейтом [15]

те рассматривались также уран-плутониевые растворы радиохимического производства [19 и 20]. Растворы урана и плутония с концентрацией от 1 до 10 г/л и активностью продуктов деления 100 мкКи/мл были измерены К-РФА с использованием рентгеновской трубки. Анализ данных была аналогичен анализу, применяемому для растворов урана с торием, и авторы предложили объединить К-РФА с плотнотрией по К-краю для получения абсолютных концентраций элементов.

Отмар и др. [21 и 22] исследовали комбинацию К-РФА и плотнотрией по К-краю поглощения с использованием рентгеновского генератора. Две эти методики являются дополняющими и образуют измерительную систему с широким динамическим диапазоном. С ее помощью были точно измерены растворы отработавшего топлива реакторов на легкой воде с активностями порядка 100 Ки/л и отношениями U/Pu~100. Основной компонент, уран (~200 г/л), определяется с

использованием плотнометрии по краю поглощения, в то время как отношение U/Pu определяется посредством РФА. При времени измерений 1000 с получены погрешность определения концентрации урана, равная 0,25 %, и погрешность определения отношения U/Pu , равная 1 %. Использовались две ячейки для образцов: двухсантиметровые стеклянные кюветы (размеры которых известны с погрешностью ± 2 мкм) для плотнометрических измерений и полиэтиленовый пузырек диаметром 1 см для измерений РФА. Для достижения максимального

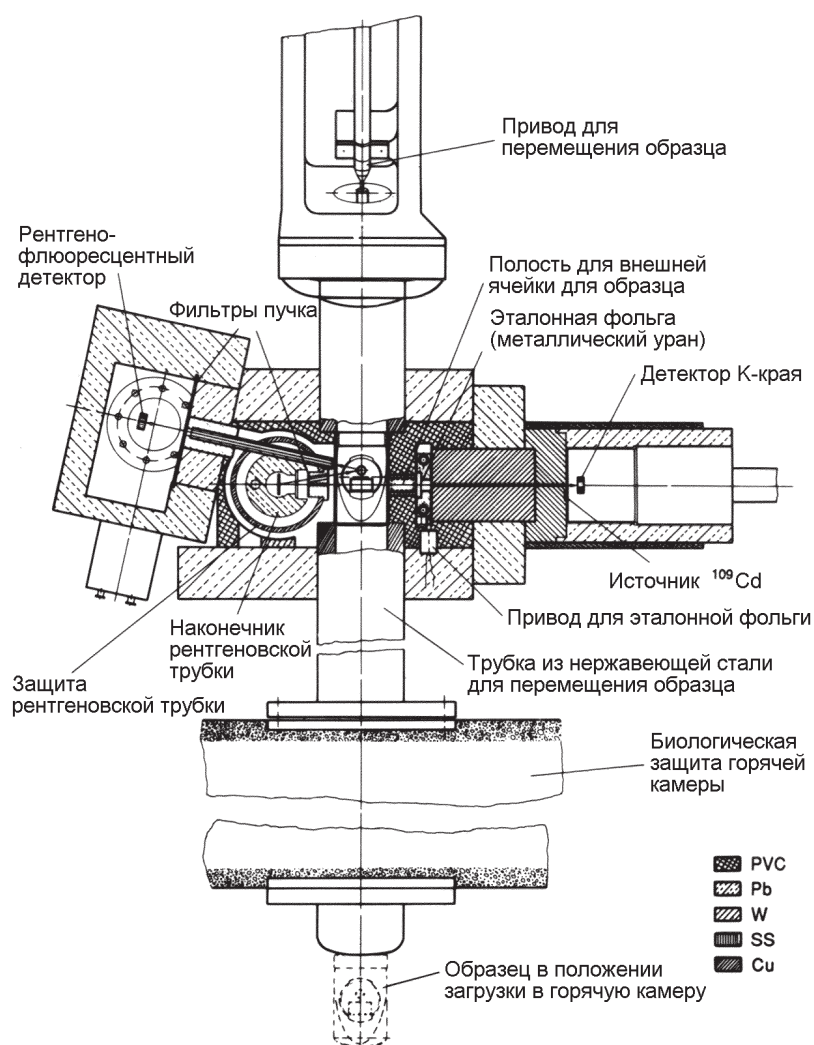


Рис. 10.16. Блок-схема гибридной системы плотнометрии по К-краю поглощения и рентгеновской флуоресценции К-серии ([21]) (Благодарность Х. Оттмару)

отношения сигнал/фон РФА измерения проводятся при угле обратного рассеяния $\sim 157^\circ$. Такая гибридная система показана на рис. 10.16.

Ламберт и др. [23] для измерения отношения U/Pu в таблетках смешанного оксидного топлива использовали вторичное возбуждение рентгеновской флуоресценции L-серии. Погрешность анализа таблеток с 25 % PuO₂ и 75 % UO₂ составила 0,5 % при времени измерения 3 мин. Для возбуждения требуемого рентгеновского излучения использовалась селективная фольга для вторичных мишеней (родий). В этом методе необходима хорошая гомогенность образца, т.к. анализируемая часть образца относительно мала (глубина анализа ~ 30 мкм).

ЛИТЕРАТУРА

1. E.P. Bertin, *Principles and Practice of X-Ray Spectrometric Analysis* (Plenum Press, New York, 1975).
2. R. Jenkins, R. W. Gould, and D. Gedcke, *Quantitative X-Ray Spectrometry* (Marcel Dekker, Inc., New York, 1981).
3. R. Tertian and F. Claisse, *Principles of Quantitative X-Ray Fluorescence Analysis* (Heyden & Son, Inc., Philadelphia, Pennsylvania, 1982).
4. R. Woldseth, *All You Ever Wanted to Know About XES* (Kevex Corp., Burlingame, California, 1973).
5. G.F. Knoll, *Radiation Detection and Measurement* (John Wiley & Sons, Inc., New York, 1979), p. 310.
6. P. Martinelli, "Possibilities of Plutonium Analysis by Means of X-Ray Fluorescence with an Iridium-192 Radioactive Source," *Analysis* 8 (10), 499-504 (1980).
7. R. Strittmatter, M. Baker, and P. Russo, "Uranium Solution Assay by Transmission-Corrected X-Ray Fluorescence," in "Nuclear Safeguards Research and Development Program Status Report, May-August 1978," Los Alamos Scientific Laboratory report LA-7616-PR (1979), pp. 23-24.
8. T. R. Canada, D. C. Camp, and W. D. Ruhter, "Single-Energy Transmission-Corrected Energy-Dispersive XRF for SNM-Bearing Solutions," Los Alamos National Laboratory document LA-UR-82-557.
9. P. Russo, M. P. Baker, and T. R. Canada, "Uranium-Plutonium Solution Assay by Transmission-Corrected X-Ray Fluorescence," in "Nuclear Safeguards Research and Development Program Status Report, September-December, 1977," Los Alamos Scientific Laboratory report LA-7211-PR (1978), pp. 22-28.
10. J. John, F. Sebesta, and J. Sedlacek, "Determination of Uranium Isotopic Composition in Aqueous Solutions by Combined Gamma Spectrometry and X-Ray Fluorescence," *Journal of Radioanalytical Chemistry* 78 (2), 367-374 (1983).
11. J.W. Rowson and S. A. Hontzeas, "Radioisotopic X-Ray Analysis of Uranium Ores Using Compton Scattering for Matrix Correction," *Canadian Journal of Spectroscopy* 22 (1), 24-30 (1977).
12. T.R. Canada and S. T. Hsue, "A Note on the Assay of Special Nuclear Materials in Solution by X-Ray Fluorescence," *Nuclear Materials Management* XI (2), 91 (1982).

13. Y. Baba and H. Muto, "Determination of Uranium and Plutonium in Solution by Energy-Dispersive X-Ray Fluorescence Analysis," *Bunseki Kagaku* 32, T99-T104 (1983).
14. J. Karamanova, "Development of an Express NDA Technique (using radioisotopic sources) for the Concentration Measurements of Nuclear Materials, 1 November 1974-30 June 1977," International Atomic Energy Agency report IAEA-R-1557R (1977).
15. W.L. Pickles and J. L. Cafe, Jr., "Quantitative Nondispersive X-Ray Fluorescence Analysis of Highly Radioactive Samples for Uranium and Plutonium Concentrations," Lawrence Livermore Laboratory report UCRL-7417 (1973).
16. D.C. Camp and W. D. Ruhter, "Nondestructive, Energy-Dispersive X-Ray Fluorescence Analysis of Product Stream Concentrations from Reprocessed Nuclear Fuels," in *Proc. American Nuclear Society Topical Conference on Measurement Technology for Safeguards and Materials Control*, Kiawah Island, South Carolina, November 26-28, 1979 (National Bureau of Standards, Washington, DC, 1980), p. 584.
17. D.C. Camp, W. D. Ruhter, and K. W. MacMurdo, "Determination of Actinide Process- and Product-Stream Concentrations Off-line or At-line by Energy-Dispersive X-Ray Fluorescence Analysis," in *Proc. Third Annual Symposium on Safeguards and Nuclear Materials Management*, Karlsruhe, Federal Republic of Germany, May 6-8, 1981 (European Safeguards Research and Development Association, Brussels, Belgium, 1981), p. 155.
18. G. Andrew, B. L. Taylor, and B. Metcalfe, "Estimation of Special Nuclear Materials in Solution by K X-ray Fluorescence and Absorption Edge Densitometry," United Kingdom Atomic Energy Authority report AERE-R9707 (1980).
19. G. Andrew and B. L. Taylor, "The Measurement of Pu and U in Reprocessing Plant Solutions by Tube-Excited K X-Ray Fluorescence," United Kingdom Atomic Energy Authority report AERE-R9864 (1980).
20. G. Andrew and B. L. Taylor, "The Feasibility of Using K-XRF for the On-line Measurement of Pu/U Ratios of Highly Active Dissolver Solutions," United Kingdom Atomic Energy Authority report AERE-M3134 (1980).
21. H. Ottmar, H. Eberle, P. Matussek, and I. Michel-Piper, "Qualification of K-Absorption Edge Densitometry for Applications in International Safeguards," International Atomic Energy report IAEA-SM-260/34 (1982).
22. H. Ottmar, H. Eberle, P. Matussek, and I. Michel-Piper, "How to Simplify the Analytics for Input-Output Accountabilty Measurements in a Reprocessing Plant," Kernforschungszentrum Karlsruhe report KfK 4012 (1986).
23. M.C. Lambert, M. W. Goheen, M. W. Urie, and N. Wynhoff, "An Automated X-Ray Spectrometer for Mixed-Oxide Pellets," Hanford Engineering Development Laboratory report HEDL-SA1492 (1978).

Глава 11

Природа нейтронного излучения

Н. Энслин
(Переводчик Г. В. Орлова)

11.1 ВВЕДЕНИЕ

Ядерные материалы, используемые в ядерном топливном цикле, излучают как нейтроны, так и гамма-кванты. Для большинства изотопов интенсивность нейтронного излучения чрезвычайно низка по сравнению с интенсивностью гамма-излучения. Но есть изотопы, для которых интенсивность нейтронного излучения достаточно высока для образования легко измеримого сигнала. Если анализируемый образец слишком плотный и не позволяет гамма-квантам покинуть его, то в этом случае анализ с использованием пассивной регистрации нейтронов, возможно, будет более предпочтительным методом.

Ядерные материалы излучают нейтроны в широком диапазоне энергий. При прохождении через вещество нейтроны взаимодействуют с ним и изменяют свою энергию сложным путем (см. главу 12). Однако нейтронные детекторы (см. главу 13) обычно не сохраняют информацию об энергии регистрируемых нейтронов. Поэтому метод нейтронного анализа заключается в регистрации количества испущенных нейтронов, причем их энергия неизвестна. Этим метод и отличается от анализа по гамма-излучению, при котором гамма-кванты с дискретной энергией испускаются определенными радиоактивными изотопами. Как же в таком случае получить нейтронный сигнал, пропорциональный количеству измеряемого изотопа?

В этой главе описано, как нейтроны возникают в результате спонтанного и вынужденного деления, а также в результате реакций с альфа-частицами или фотонами. Во многих случаях такие процессы характеризуются выходом нейтронов с низкой или высокой интенсивностью излучения, характерными временными распределениями или явно разными энергетическими спектрами. Эти виды информации могут быть использованы для получения количественных результатов анализа определенного изотопа, если изотопный состав образца известен и в образце присутствуют только лишь несколько изотопов.

В данной главе при обсуждении нейтронного излучения особое внимание уделяется тем характеристикам, которые могут быть использованы для анализа. В главах 14 и 15 центральное место отведено методикам регистрации полного потока нейтронов, использующим высокую интенсивность излучения или необычные энергетические спектры нейтронов. В главах 16 и 17 описаны методы регистрации совпадений, основанные на временных распределениях нейтронов.

11.2 СПОНТАННОЕ И ВЫНУЖДЕННОЕ ДЕЛЕНИЕ ЯДЕР

Спонтанное деление ядер урана, плутония или других тяжелых элементов является источником нейтронов и играет важную роль. Понять такой сложный процесс можно путем представления ядра в виде капли жидкости (рис. 11.1). Ко-

роткодействующие ядерные силы сильного взаимодействия действуют подобно поверхностному натяжению и удерживают каплю таким образом, чтобы она могла противодействовать электростатическому отталкиванию протонов. В наиболее тяжелых элементах силы отталкивания настолько велики, что жидкая капля может удержаться с трудом. Имеется небольшая, но конечная вероятность того, что капля будет деформироваться в две капли, соединенные узким перешейком (седловой точкой). Эти две капли могут спонтанно отделиться (расщепиться), образуя два осколка. За временной интервал 10^{-13} с, в течение которого происходит деление, каждый из осколков излучает некоторое количество мгновенных нейтронов и гамма-квантов. Осколки обычно неодинаковы по размеру, а их массы распределяются относительно массовых чисел 100 и 140 (см. рис. 18.2 в главе 18). Эти осколки деления уносят большую часть энергии, выделяющуюся при делении (обычно 170 МэВ) в виде кинетической энергии. Кроме того, за интервал времени, равный нескольким миллисекундам или секундам, многие осколки деления испытывают бета-распад с образованием других изотопов, которые могут излучать запаздывающие нейтроны или гамма-кванты.

Спонтанное деление — это квантово-механический процесс, включающий в себя прохождение сквозь потенциальный барьер. Высота барьера и, соответственно, интенсивность деления сильно зависит от атомного номера Z и массового числа A . Выходы нейтронов деления некоторых тяжелых изотопов приведены в табл. 11.1 [1-6]. Для тория, урана и плутония интенсивность деления низка по

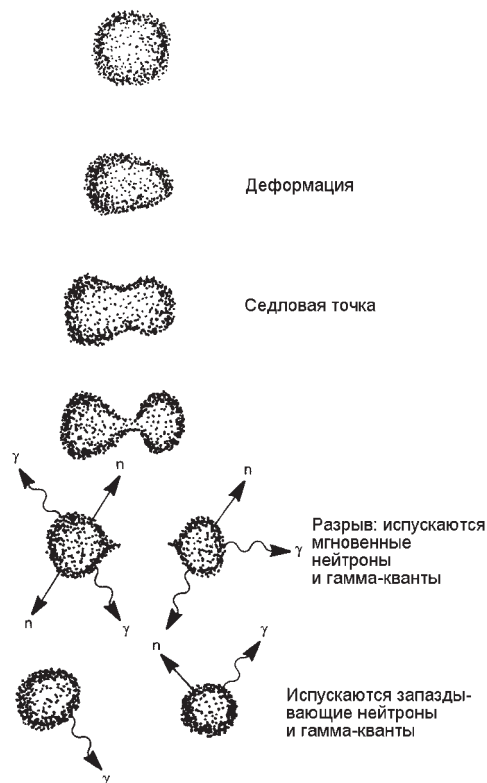


Рис. 11.1. Спонтанное деление ядра, представленное как разрыв жидкой капли

сравнению со скоростью альфа-распада, который вносит основной вклад в полный период полураспада. Для калифорния и более тяжелых четных элементов интенсивность деления может достигнуть скорости альфа-распада. Выход нейтронов деления для ^{240}Pu , составляющий 1020 нейтр./с-г [4, 5], является самым важным удельным выходом при пассивном нейтронном анализе, поскольку ^{240}Pu — обычно основной нейтронно-излучающий изотоп плутония.

Таблица 11.1 – Выход нейтронов спонтанного деления

Изотоп А	Число протонов Z	Число нейтронов N	Полный период полураспада [1]	Период полураспада спонтанного деления [2]*, лет	Выход нейтронов спонтанного деления [2]*, нейтр./с-г	Множественность нейтронов спонтанного деления [2*, 6]	Множественность нейтронов вынужденного деления на тепловых нейтронах [6]
^{232}Th	90	142	$1,41 \times 10^{10}$ года	$>1 \times 10^{21}$	$>6 \times 10^{-8}$	2,14	1,9
^{232}U	92	140	71,7 года	8×10^{13}	1,3	1,71	3,13
^{233}U	92	141	$1,59 \times 10^5$ года	$1,2 \times 10^{17}$	$8,6 \times 10^{-4}$	1,76	2,4
^{234}U	92	142	$2,45 \times 10^5$ года	$2,1 \times 10^{16}$	$5,02 \times 10^{-3}$	1,81	2,4
^{235}U	92	143	$7,04 \times 10^8$ года	$3,5 \times 10^{17}$	$2,99 \times 10^{-4}$	1,86	2,41
^{236}U	92	144	$2,34 \times 10^7$ года	$1,95 \times 10^{16}$	$5,49 \times 10^{-3}$	1,91	2,2
^{238}U	92	146	$4,47 \times 10^9$ года	$8,20 \times 10^{15}$	$1,36 \times 10^{-2}$	2,01	2,3
^{237}Np	93	144	$2,14 \times 10^6$ года	$1,0 \times 10^{18}$	$1,14 \times 10^{-4}$	2,05	2,70
^{238}Pu	94	144	87,74 года	$4,77 \times 10^{10}$	$2,59 \times 10^3$	2,21	2,9
^{239}Pu	94	145	$2,41 \times 10^4$ года	$5,48 \times 10^{15}$	$2,18 \times 10^{-2}$	2,16	2,88
^{240}Pu	94	146	$6,56 \times 10^3$ года	$1,16 \times 10^{11}$	$1,02 \times 10^3$	2,16	2,8
^{241}Pu	94	147	14,35 года	$(2,5 \times 10^{15})$	(5×10^{-2})	2,25	2,8
^{242}Pu	94	148	$3,76 \times 10^5$ года	$6,84 \times 10^{10}$	$1,72 \times 10^3$	2,15	2,81
^{241}Am	95	146	433,6 года	$1,05 \times 10^{14}$	1,18	3,22	3,09
^{242}Cm	96	146	163 дня	$6,56 \times 10^6$	$2,10 \times 10^7$	2,54	3,44
^{244}Cm	96	148	18,1 года	$1,35 \times 10^7$	$1,08 \times 10^7$	2,72	3,46
^{249}Bk	97	152	320 дней	$1,90 \times 10^9$	$1,0 \times 10^5$	3,40	3,7
^{252}Cf	98	154	2,646 года	85,5	$2,34 \times 10^{12}$	3,757	4,06

*Значения в круглых скобках взяты из [3] и имеют точность в два порядка величины. Интенсивность излучения ^{240}Pu взята из [4 и 5].

Сильная зависимость интенсивности спонтанного деления от числа протонов и нейтронов весьма важна для рассмотрения анализа. Интенсивность деления нечетно-четных изотопов обычно на 3 порядка меньше, а интенсивность деления нечетно-нечетных изотопов обычно на 5 порядков меньше интенсивности деления четно-четных изотопов. Такое большое различие обусловлено ядерными спин-эффектами [7]. Когда делящееся ядро начинает деформироваться, полный спин основного состояния ядра должен сохраняться. Однако с возрастанием деформации квантованные угловые орбиты отдельных нейтронов или протонов приобретают разные энергии. Самая низкая энергетическая орбита недеформированного ядра может не быть самой низкой энергетической орбитой в деформированном ядре. В случае тяжелых четно-четных ядер, для которых полный спин основного квантового состояния равен нулю, спины наиболее удаленных пар нейтронов и протонов могут складываться и давать нуль в процессе их смещения к самым низким энергетическим орбитам. В случае нечетных ядер один нейтрон или протон должен занимать такую орбиту, которая сохраняет полный спин ядра, даже если требуется избыточная энергия [8, 9]. Данный эффект повышает барьер деления и делает нечетно-четные и нечетно-нечетные изотопы более устойчивыми к спонтанному делению по сравнению с четно-четными изотопами.

Среди четно-четных изотопов с высоким выходом нейтронов спонтанного деления выделяются ^{238}U , ^{238}Pu , ^{240}Pu , ^{242}Pu , ^{242}Cm , ^{244}Cm и ^{252}Cf . Как описано выше, изотопы с нечетным числом нейтронов или протонов не имеют высокого выхода нейтронов спонтанного деления. Однако изотопы с нечетным числом нейтронов можно без труда заставить делиться, если бомбардировать их низкоэнергетическими нейтронами; в результате поглощения дополнительного нейтрона создается несвязанная нейтронная пара, энергия которой теперь достаточна для возбуждения составного ядра до энергии, близкой к порогу деления. К четно-нечетным изотопам, которые могут делиться нейтронами нулевой энергии, но имеют низкий выход нейтронов спонтанного деления, относятся ^{233}U , ^{235}U и ^{239}Pu . Эти изотопы называются "делящимися". Четно-четные изотопы, такие как ^{238}U и ^{240}Pu , которые не делятся нейтронами низких энергий, называются "воспроизводящими". Данный термин заимствован из теории реакторов и обязан тому, что захватывая нейтроны, эти изотопы воспроизводят делящиеся изотопы. Примеры сечений вынужденного деления воспроизводящих и делящихся изотопов приведены в главе 12.

11.3 НЕЙТРОНЫ И ГАММА-КВАНТЫ ДЕЛЕНИЯ

Наиболее полезными для пассивного анализа являются испускаемые при расщеплении мгновенные нейтроны и гамма-кванты, благодаря их интенсивности и проникающей способности. Многие приборы пассивного анализа, например, счетчики совпадений, предназначены для регистрации мгновенных нейтронов деления. Они часто также чувствительны к гамма-излучению. Поэтому в данном разделе описывается как нейтронное, так и гамма-излучение.

На рис. 11.2 показан энергетический спектр нейтронов, испускаемых при спонтанном делении ^{252}Cf [10, 11]. Средняя энергия равна 2,14 МэВ. Спектр зависит от многих переменных, например, таких как энергия возбуждения осколков деления и выделяемая средняя энергия полного деления. Он может быть аппрок-

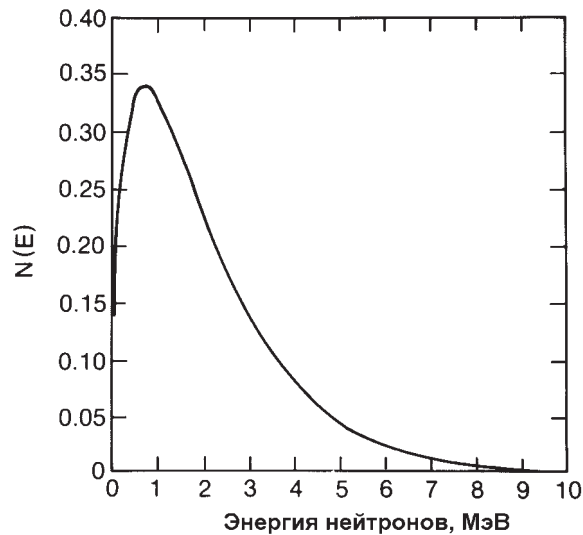


Рис. 11.2. Спектр мгновенных нейтронов спонтанного деления ^{252}Cf , рассчитанный из распределения Максвелла с “температурой” $T = 1,43$ МэВ

симирован распределением Максвелла $N(E)$, где $N(E)$ изменяется, как $\sqrt{E} \exp(-E / 1,43 \text{ МэВ})$. Этот спектр пропорционален \sqrt{E} при низких энергиях и экспоненциально уменьшается при высоких энергиях. Спектры нейтронов спонтанного деления ^{240}Pu и вынужденного деления ^{233}U , ^{235}U и ^{239}Pu , вызванного тепловыми нейтронами, также могут быть аппроксимированы распределениями Максвелла с параметрами спектра 1,32; 1,31; 1,29 и 1,33 МэВ, соответственно [12, 13].

Число нейтронов, испускаемых при спонтанном или вынужденном делении, называется множественностью нейтронов. Средняя множественность нейтронов $\bar{\nu}$ включена в последние два столбца табл. 11.1. При вынужденном делении нейтронов множественность медленно и линейно увеличивается с ростом энергии нейтрона [14]. Множественность, приведенная в последнем столбце табл. 11.1, приблизительно верна для тепловых или низкоэнергетических нейтронов.

В разных актах деления множественность нейтронов может изменяться от 0 до 6 или более в зависимости от распределения энергии возбуждения между осколками деления. В табл. 11.2 [15-17] приведены измеренные распределения множественности мгновенных нейтронов $P(\nu)$ некоторых важных изотопов при спонтанном делении или вынужденном делении тепловыми нейтронами. Неопределенности при конкретных вероятностях изменяются от 1-5 % в области максимума до 30-50 % в области крайних точек. Террелл [18] показал, что распределения множественности нейтронов как при спонтанном делении, так и при вынужденном делении тепловыми нейтронами, можно аппроксимировать распределением Гаусса с центром на средней множественности нейтронов $\bar{\nu}$ в виде

$$P(\nu) = \frac{1}{\sqrt{2\pi\sigma^2}} e^{-(\nu-\bar{\nu})^2/2\sigma^2}. \quad (11.1)$$

Ширина распределения σ , равная 1,08, может использоваться при аппроксимации для всех изотопов, за исключением ^{252}Cf , для которого следует использовать σ , равную 1,21.

Таблица 11.2 – Измеренные распределения множественности мгновенных нейтронов деления

Распределение вероятностей	Вынужденное деление ^{235}U [15]	Спонтанное деление ^{238}Pu [16, 17]	Вынужденное деление ^{239}Pu [15]	Спонтанное деление ^{240}Pu [15]	Спонтанное деление ^{242}Pu [15]	Спонтанное деление ^{252}Cf [15]
P(0)	0,033	0,054	0,011	0,066	0,068	0,002
P(1)	0,174	0,205	0,101	0,232	0,230	0,026
P(2)	0,335	0,380	0,275	0,329	0,334	0,127
P(3)	0,303	0,225	0,324	0,251	0,247	0,273
P(4)	0,123	0,108	0,199	0,102	0,099	0,304
P(5)	0,028	0,028	0,083	0,018	0,018	0,185
P(6)	0,003		0,008	0,002	0,003	0,066
P(7)						0,015
P(8)						0,002
$\bar{\nu}$	2,406	2,21	2,879	2,156	2,145	3,757
$\overline{\nu(\nu-1)}$	4,626	3,957	6,773	3,825	3,794	11,962
$\overline{\nu(\nu-1)(\nu-2)}$	6,862	5,596	12,630	5,336	5,317	31,812

Данные о распределении множественности нейтронов в процессе деления используются при анализе совпадений (см. главу 16). Здесь возникает вопрос, взаимосвязаны ли множественность нейтронов и их средняя энергия. Другими словами, если число нейтронов, испускаемых при делении, выше среднего, будет ли их средняя энергия ниже средней? Имеющиеся экспериментальные данные показывают, что средняя энергия испущенных нейтронов приблизительно постоянна, и что число испускаемых нейтронов увеличивается вместе с количеством имеющейся энергии [19]. Таким образом, средняя энергия почти не зависит от множественности.

После деления ядра мгновенные нейтроны испускаются из осколков деления до тех пор, пока остающаяся в них энергия возбуждения не станет меньше энергии связи нейтрона. Начиная с этого момента, мгновенное гамма-излучение уносит остающуюся энергию и момент количества движения. В среднем излучается от 7 до 10 мгновенных гамма-квантов с полной энергией от 7 до 9 МэВ [7]. На рис. 11.3 показан спектр мгновенного гамма-излучения при спонтанном делении ^{252}Cf , зарегистрированный детектором на основе кристалла NaI [20]. Спектр, полученный при использовании детектора с высоким разрешением, возможно, обнаружил бы много дискретных переходов, хотя они имели бы доплеровское расширение вследствие отдачи осколков деления. Интенсивность мгновенного гам-

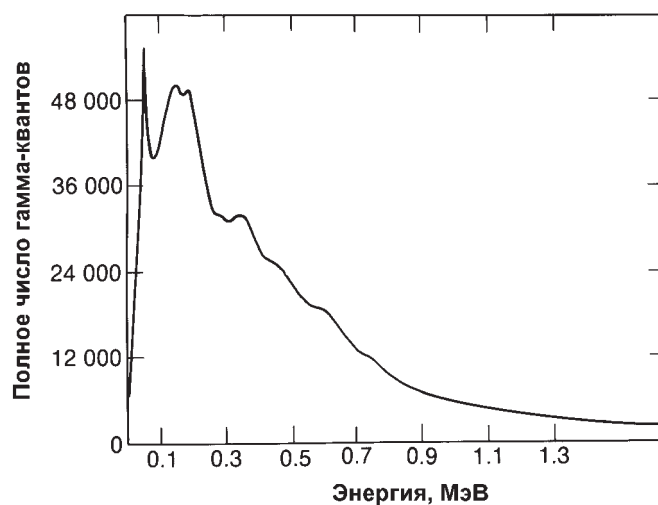


Рис. 11.3. Спектр мгновенных гамма-квантов спонтанного деления ^{252}Cf , зарегистрированный детектором NaI [20]

ма-излучения при делении намного ниже, чем интенсивность гамма-излучения, сопровождающего альфа-распад (см. главу 1). Поэтому оно не используется для пассивного анализа, несмотря на его относительно высокую энергию. Однако мгновенное гамма-излучение при делении можно использовать при регистрации совпадений, где его высокая множественность может привести к появлению сильного сигнала.

В этот раздел включено краткое описание запаздывающих нейтронов и гамма-квантов, испускаемых после деления. В системах пассивного анализа запаздывающие нейтроны и гамма-излучение обычно маскируются более интенсивным мгновенным излучением. Однако в системах активного анализа часто используется временная задержка, чтобы отделить сигнал внешнего источника подсветки от сигнала вынужденного деления. Более подробная информация по сигналам запаздывающего излучения приводится в работе [21].

Запаздывающие нейтроны испускаются некоторыми изотопами, возникающими в результате бета-распада осколков деления. Они излучаются сильно возбужденными изотопами по мере их образования. Таким образом, запаздывающие нейтроны появляются в соответствии с периодами полураспада, характерными для изотопов-предшественников. Хотя имеется много таких изотопов, запаздывающие нейтроны можно разделить на шесть групп с периодами полураспада от 200 мс до 55 с [22]. Выход нейтронов каждой группы разный для каждого изотопа урана или плутония. В принципе, системы активного анализа могут использовать это различие как признак изотопного состава облучаемого образца [21], но на практике это трудно реализовать. Энергетические спектры запаздывающих нейтронов сильно структурированы в отличие от гладких максвелловских спектров мгновенных нейтронов. Кроме того, средняя энергия запаздывающих нейтронов составляет только 300-600 кэВ, а не 2 МэВ, как у мгновенных нейтронов. Самым важным является то, что число запаздывающих нейтронов, как правило, составляет только 1 % от числа мгновенных нейтронов. Таким образом, хотя запаздыва-

ющие нейтроны влияют на пассивные измерения нейтронов, это влияние невелико.

Запаздывающее гамма-излучение при делении имеет более высокую интенсивность и меньшую скорость испускания, чем запаздывающие нейтроны. Их средняя множественность и энергия сравнимы со средней множественностью и энергией мгновенного гамма-излучения: 6-8 гамма-квантов, каждый из которых имеет среднюю энергию, близкую к 1 МэВ. Между временем испускания мгновенных и запаздывающих гамма-квантов не существует четкого различия в отличие от мгновенных и запаздывающих нейтронов. Гозани [21] использовал в качестве подходящего разграничения время после деления, равное 10^{-9} с. Запаздывающие гамма-кванты, определенные таким образом, испускаются в течение нескольких секунд или минут. Интенсивность этих гамма-квантов на два порядка превышает интенсивность запаздывающих нейтронов.

11.4 НЕЙТРОНЫ, ИСПУСКАЕМЫЕ В РЕАКЦИЯХ (α, n)

Ядра могут спонтанно распадаться как с испусканием альфа- или бета-частиц, так и при делении. Альфа-частицы — это ядра гелия с двумя протонами и двумя нейтронами, а бета-частицы — это энергетически свободные электроны. В принципе, все ядра с массовым числом больше 150 склонны к альфа-распаду. Однако альфа-распад является процессом прохождения сквозь квантово-механический барьер, подобным спонтанному делению. Кулоновский барьер является достаточно высоким, что делает альфа-распад маловероятным для всех элементов, кроме самых тяжелых. В табл. 11.3 [1, 2, 23-25] представлены вероятности альфа-распада некоторых тяжелых элементов. Полные периоды полураспада изотопов, перечисленных в таблице, почти такие же, как для альфа-распада, за исключением ^{241}Pu и ^{249}Bk , для которых доминирует бета-распад, и ^{252}Cf , интенсивность спонтанного деления которого составляет около 3% от интенсивности альфа-распада.

Процесс альфа-распада ведет к испусканию гамма-квантов неустойчивыми дочерними ядрами (см. главу 1). Кроме того, альфа-частицы могут приводить к образованию нейтронов, вступая в реакции (α, n) с некоторыми элементами. Этот источник нейтронов можно сравнить по интенсивности со спонтанным делением при наличии изотопов с высокими вероятностями альфа-распада, таких, например, как ^{233}U , ^{234}U , ^{238}Pu или ^{241}Am . В данном разделе описано образование нейтронов в результате реакций (α, n) и даны общие правила для расчета ожидаемого выхода нейтронов.

Далее представлены два примера реакций (α, n), происходящих во многих материалах ядерного топливного цикла:

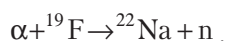
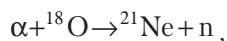


Таблица 11.3 – Выходы нейтронов (α, n)-реакции

Изо- топ A	Полный период полураспада [1]	Период полураспада для альфа-распада [1]	Выход альфа- частиц, α /с·г [1]	Средняя энергия альфа-час- тиц, МэВ [1]	Выход нейтронов в реакции (α, n) в оксиде, нейтр./с·г [2]	Выход нейтронов в реакции (α, n) в UF_6/PuF_4 , нейтр./с·г [23, 24 / 25]
^{232}Th	$1,41 \times 10^{10}$ года	$1,41 \times 10^{10}$ года	$4,1 \times 10^3$	4,00	$2,2 \times 10^{-5}$	
^{232}U	71,7 года	71,7 года	$8,0 \times 10^{11}$	5,30	$1,49 \times 10^4$	$2,6 \times 10^6$
^{233}U	$1,59 \times 10^5$ года	$1,59 \times 10^5$ года	$3,5 \times 10^8$	4,82	4,8	$7,0 \times 10^2$
^{234}U	$2,45 \times 10^5$ года	$2,45 \times 10^5$ года	$2,3 \times 10^8$	4,76	3,0	$5,8 \times 10^2$
^{235}U	$7,04 \times 10^8$ года	$7,04 \times 10^8$ года	$7,9 \times 10^4$	4,40	$7,1 \times 10^{-4}$	0,08
^{236}U	$2,34 \times 10^7$ года	$2,34 \times 10^7$ года	$2,3 \times 10^6$	4,48	$2,4 \times 10^{-2}$	2,9
^{238}U	$4,47 \times 10^9$ года	$4,47 \times 10^9$ года	$1,2 \times 10^4$	4,19	$8,3 \times 10^{-5}$	0,028
^{237}Np	$2,14 \times 10^6$ года	$2,14 \times 10^6$ года	$2,6 \times 10^7$	4,77	$3,4 \times 10^{-1}$	
^{238}Pu	87,74 года	87,74 года	$6,4 \times 10^{11}$	5,49	$1,34 \times 10^4$	$2,2 \times 10^6$
^{239}Pu	$2,41 \times 10^4$ года	$2,41 \times 10^4$ года	$2,3 \times 10^9$	5,15	$3,81 \times 10^1$	$5,6 \times 10^3$
^{240}Pu	$6,56 \times 10^3$ года	$6,56 \times 10^3$ года	$8,4 \times 10^9$	5,15	$1,41 \times 10^2$	$2,1 \times 10^4$
^{241}Pu	14,35 года	$5,90 \times 10^5$ года	$9,4 \times 10^7$	4,89	1,3	$1,7 \times 10^2$
^{242}Pu	$3,76 \times 10^5$ года	$3,76 \times 10^5$ года	$1,4 \times 10^8$	4,90	2,0	$2,7 \times 10^2$
^{241}Am	433,6 года	433,6 года	$1,3 \times 10^{11}$	5,48	$2,69 \times 10^3$	
^{242}Cm	163 дня	163 дня	$1,2 \times 10^{14}$	6,10	$3,76 \times 10^6$	
^{244}Cm	18,1 года	18,1 года	$3,0 \times 10^{12}$	5,80	$7,73 \times 10^4$	
^{249}Bk	320 дней	$6,1 \times 10^4$ года	$8,8 \times 10^8$	5,40	$1,8 \times 10^1$	
^{252}Cf	2,646 года	2,731 года	$1,9 \times 10^{13}$	6,11	$6,0 \times 10^5$	

Альфа-частица, испускаемая ураном или плутонием, имеет энергию в диапазоне от 4 до 6 МэВ. Поскольку ^{234}U является доминирующим альфа-излучателем в обогащенном уране, средняя энергия альфа-частиц, испускаемых ураном, составляет 4,7 МэВ (см. табл. 11.3). Для плутония средняя энергия альфа-частиц составляет 5,2 МэВ. Длина пробега альфа-частиц урана в воздухе равна 3,2 см, плутония — 3,7 см. Длину пробега в других материалах можно оценить по формуле Брэгга-Климана [26]:

$$\text{Длина пробега} = 0,00032 \frac{\sqrt{A}}{\text{плотность, г / см}^3} \times \text{длина пробега в воздухе,} \quad (11.2)$$

где A — массовое число элемента.

Длина пробега в оксиде урана и плутония составляет приблизительно 0,006 и 0,007 см, соответственно. Таким образом, проходя через материал, альфа-частицы очень быстро теряют энергию. Во многих случаях эта малая длина пробега означает, что альфа-частица никогда не достигнет соседних материалов, в которых могли бы проходить реакции (α, n) . Однако, если такие элементы, как кислород или фтор, смешаны с альфа-излучающим ядерным материалом, реакция (α, n) возможна, поскольку альфа-частица может достигнуть этих элементов до того, как потеряет всю свою энергию.

Когда альфа-частица достигнет другого ядра, вероятность реакции зависит от значения энергии реакции Q , пороговой энергии и высоты кулоновского барьера. Значение энергии реакции Q — это разница в энергиях связи между двумя начальными ядрами и двумя конечными продуктами реакции. Если величина Q положительная, то в результате реакции освобождается энергия. Если величина Q отрицательная, то альфа-частица должна иметь, по крайней мере, столько же энергии в системе координат центра масс, чтобы реакция произошла. Если эту требуемую минимальную энергию преобразовать в лабораторную систему координат, она будет называться пороговой энергией:

$$\begin{aligned} \text{Пороговая энергия} &= -Q(1 + 4/A), & \text{если } Q \text{ отрицательная,} \\ \text{Пороговая энергия} &= 0, & \text{если } Q \text{ положительная.} \end{aligned} \quad (11.3)$$

Кулоновский барьер — это сила электростатического отталкивания, которую альфа-частица должна преодолеть для того, чтобы войти в ядро-мишень и взаимодействовать с ним.

$$\text{Кулоновский барьер (МэВ)} = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{r_0 (A_1^{1/3} + A_2^{1/3})}, \quad (11.4)$$

где $Z_1 = 2$, $A_1 = 4$, $e^2 = 1,44$ МэВ·ферми, $r_0 = 1,2$ ферми, а Z_2 и A_2 относятся к ядру мишени [27]. Таким образом, реакция (α, n) энергетически возможна только в том случае, если альфа-частица обладает достаточной энергией, чтобы, во-первых, преодолеть или пройти сквозь кулоновский барьер, и, во-вторых, превысить пороговую энергию. (Обратите внимание на то, что потребности в этих двух энергиях не аддитивны). В табл. 11.4 [26, 28] эти свойства обобщаются для ядер изотопов с малой массой.

Таблица 11.4 – Значения энергии реакции Q, пороговой энергии и кулоновского барьера реакции (α, n)

Ядро	Распространенность в природе, %	Значение энергии реакции Q, МэВ [28]	Пороговая энергия, МэВ [28]	Кулоновский барьер, МэВ	Максимальная энергия нейтронов для альфа-частиц с энергией 5,2 МэВ, МэВ [26]
⁴ He	100	-18,99	38,0	1,5	
⁶ Li	7,5	-3,70	6,32	2,1	
⁷ Li	92,5	-2,79	4,38	2,1	1,2
⁹ Be	100	+5,70	0	2,6	10,8
¹⁰ B	19,8	+1,06	0	3,2	5,9
¹¹ B	80,2	+0,16	0	3,2	5,0
¹² C	98,9	-8,51	11,34	3,7	
¹³ C	1,11	+2,22	0	3,7	7,2
¹⁴ N	99,6	-4,73	6,09	4,1	
¹⁵ N	0,4	-6,42	8,13	4,1	
¹⁶ O	99,8	-12,14	15,2	4,7	
¹⁷ O	0,04	+0,59	0	4,6	5,5
¹⁸ O	0,2	-0,70	0,85	4,6	4,2
¹⁹ F	100	-1,95	2,36	5,1	2,9
²⁰ Ne	90,9	-7,22	8,66	5,6	
²¹ Ne	0,3	+2,55	0	5,5	7,6
²² Ne	8,8	-0,48	0,57	5,5	4,5
²³ Na	100	-2,96	3,49	6,0	1,8
²⁴ Mg	79,0	-7,19	8,39	6,4	
²⁵ Mg	10,0	+2,65	0	6,4	7,7
²⁶ Mg	11,0	+0,03	0	6,3	5,0
²⁷ Al	100	-2,64	3,03	6,8	2,2
²⁹ Si	4,7	-1,53	1,74	7,2	3,4
³⁰ Si	3,1	-3,49	3,96	7,2	1,4
³⁷ Cl	24,2	-3,87	4,29	8,3	1,0

Из табл. 11.4 видно, что реакции (α, n) с альфа-частицами, обладающими энергией 5,2 МэВ, возможны в 11 элементах с низким атомным номером. Для всех элементов с атомным номером больше, чем у хлора, реакция энергетически невозможна. В табл. 11.5 приведен наблюдаемый выход нейтронов в результате реакций (α, n) [29-33] для толстых мишеней. Толстая мишень — такой материал, толщина которого намного больше длины пробега альфа-частицы и в котором альфа-частицы теряют энергию только в элементе-мишени. Как видно из уравнения (11.2), длина пробега альфа-частиц в твердых телах составляет примерно 0,01 см.

Реакции (α, n) могут иметь место в таких соединениях урана или плутония, как, например, оксиды или фториды, и в таких элементах, как магний или бериллий, которые могут присутствовать в виде примесей. Выход нейтронов на грамм нуклида источника в чистых оксидах и фторидах приведен в двух последних столбцах табл. 11.3. Для других материалов выход нейтронов будет во многом зависеть от альфа-активности ядерных изотопов, энергии альфа-частиц, значений энергии реакции Q , концентрации примесей и степени смешивания (из-за короткого пробега альфа-частицы).

Уравнения (11.5)–(11.7) предусматривают оценку выхода нейтронов (α, n) -реакции в оксидах урана или плутония с примесями (предполагается, что смешивание безупречно). Выход в оксиде выглядит следующим образом:

$$Y_{\text{оксида}} = \sum_i M_i Y_i, \quad (11.5)$$

где M_i — масса i -го изотопа в граммах;

Y_i — выход нейтронов на грамм каждого альфа-излучающего изотопа, как показано в табл. 11.3.

Суммирование по i должно включать ^{241}Am , который является сильным альфа-излучателем. Выходы для соединений также можно оценить, умножая выходы из толстой мишени по табл. 11.5 на коэффициент K [34, 35]:

$$K = \frac{S_t N_t}{S_t N_t + S_\alpha N_\alpha}, \quad (11.6)$$

где S_t и S_α — скорости, при которых альфа-частица теряет энергию в материале мишени и в альфа-излучающем изотопе, соответственно;

N_t и N_α — плотности атомов мишени и альфа-излучающего изотопа, соответственно.

Некоторые значения отношения S_α/S_t приведены в [34].

Выходы из элементов, существующих в виде примесей в оксиде, могут быть оценены путем вычисления выхода нейтронов (α, n) -реакции в примесных элементах относительно выхода нейтронов (α, n) -реакции в оксиде. Аппроксимация в уравнении (11.7) пренебрегает различиями в энергиях альфа-частиц между изотопами и различиями в плотностях мишеней, которые являются результатом наличия примесей:

$$Y_{\text{примеси}} \approx Y_{\text{оксида}} \sum_j \frac{P_j A_o I_j S_j}{P_o A_j I_o S_o}, \quad (11.7)$$

где P_j — выход нейтронов (α, n)-реакции на примесном элементе из табл. 11.5;
 P_o — выход нейтронов (α, n)-реакции на кислороде: 0,059 нейтронов на 10^6 альфа-частиц плутония или 0,040 нейтронов на 10^6 альфа-частиц урана;
 A_j — массовое число примесного элемента;
 $A_o = 16$ — массовое число кислорода;
 I_j — концентрация примесей, выраженная в млн.⁻¹ (по весу) оксида;
 I_o — концентрация кислорода, выраженная таким же образом, например, 118 000 млн.⁻¹ для PuO_2 или 154 000 млн.⁻¹ для высокообогащенной U_3O_8 .

Полный выход нейтронов (α, n)-реакций представляет собой сумму уравнений (11.5) и (11.7).

Таблица 11.5 – Выходы нейтронов из толстой мишени при реакциях (α, n) (диапазон погрешностей определен разбросом данных различных публикаций)

Элемент (природный изотопный состав)	Выход нейтронов на 10^6 альфа- частиц с энергией 4,7 МэВ (^{234}U)	Выход нейтронов на 10^6 альфа-частиц с энергией 5,2 МэВ (средн. Pu)	Публи- кации	Средняя энер- гия нейтронов для альфа- частиц с энер- гией 5,2 МэВ, МэВ [29]
Li	$0,16 \pm 0,04$	$1,13 \pm 0,25$	30	0,3
Be	44 ± 4	65 ± 5	31	4,2
B	$12,4 \pm 0,6$	$17,5 \pm 0,4$	29, 30, 33	2,9
C	$0,051 \pm 0,002$	$0,078 \pm 0,004$	29, 30, 31	4,4
O	$0,040 \pm 0,001$	$0,059 \pm 0,002$	29, 30, 31	1,9
F	$3,1 \pm 0,3$	$5,9 \pm 0,6$	29, 30, 33	1,2
Na	$0,5 \pm 0,5$	$1,1 \pm 0,5$	32	
Mg	$0,42 \pm 0,03$	$0,89 \pm 0,02$	29, 30, 31	2,7
Al	$0,13 \pm 0,01$	$0,41 \pm 0,01$	29, 30, 31	1,0
Si	$0,028 \pm 0,002$	$0,076 \pm 0,003$	29, 30, 31	1,2
Cl	$0,01 \pm 0,01$	$0,07 \pm 0,04$	32	

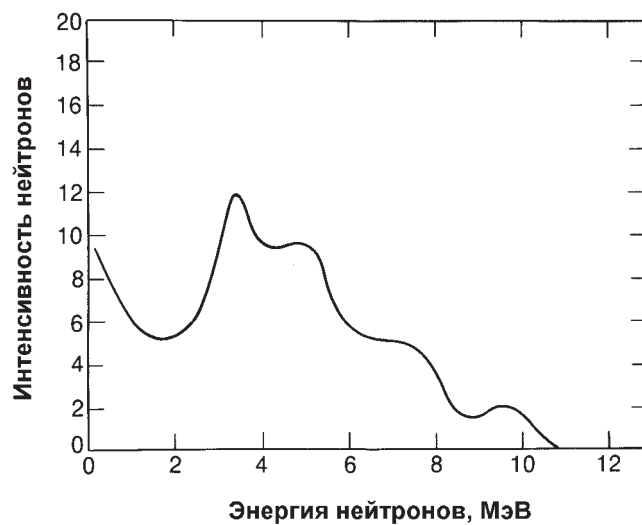


Рис. 11.4. Энергетический спектр нейтронов источника AmBe

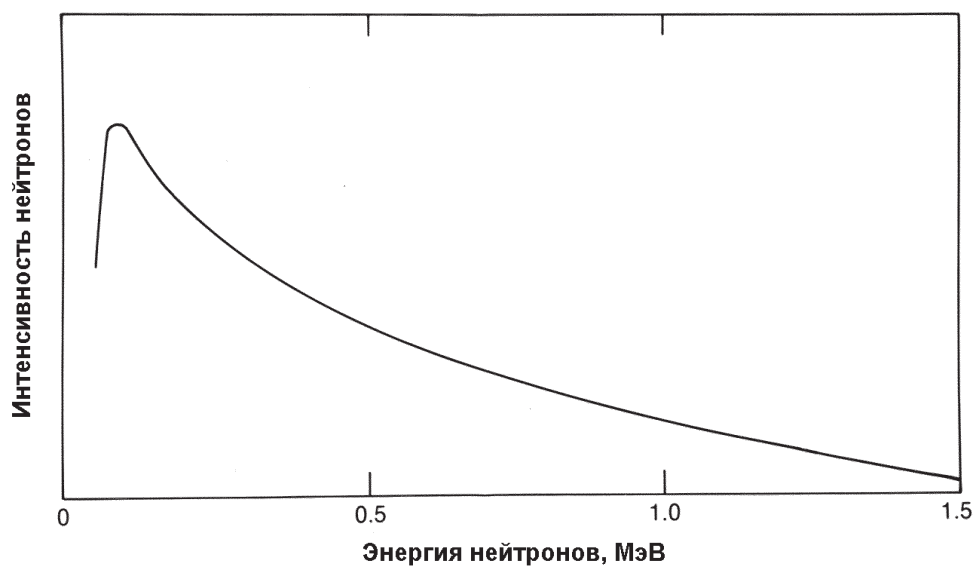


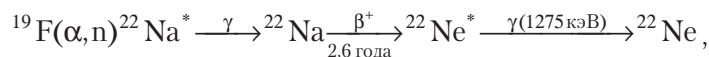
Рис. 11.5. Энергетический спектр нейтронов источника AmLi

Для наиболее точных измерений значения выходов нейтронов (α, n)-реакции из табл. 11.5 имеют погрешность от 5 до 10 %. Выходы нейтронов (α, n)-реакции на кислороде из табл. 11.3 имеют погрешность, не превышающую 10 %. Таким образом, даже при безупречном смешивании расчеты выхода нейтронов имеют погрешность, в лучшем случае, 10 %. Для влажных соединений, жидкостей или газов приведенные здесь оценки неправомерны.

Энергия нейтрона, испущенного при реакции (α, n), зависит от энергии, которую альфа-частица имеет в момент реакции, и от значения энергии реакции Q . Средняя энергия нейтронов толстой мишени приведена в табл. 11.5. Максимальная энергия нейтронов представлена в последнем столбце табл. 11.4. Нейтронные спектры некоторых источников показаны на рис. 11.4 и 11.5.

Еще одной важной характеристикой реакций (α, n) является то, что в каждой реакции излучается только один нейтрон. Эти события характеризуют нейтронный источник, который случаен во времени и имеет множественность, равную 1. Эта характеристика используется счетчиками нейтронных совпадений (главы 16, 17) для достижения избирательности между нейтронами спонтанного деления и нейтронами (α, n)-реакций.

Обратите внимание на то, что как реакции (α, n), так и реакции (α, p), могут оставить ядро в возбужденном состоянии; оно распадается, переходя в основное состояние и испуская один или более гамма-квантов. Например:



Здесь звездочкой обозначено ядро в возбужденном состоянии. Поскольку многие гамма-кванты этих реакций обладают высокой энергией и часто испускаются почти одновременно с нейтроном, они влияют на сигналы счетчиков полного потока нейтронов или нейтронных совпадений, в которые входят детекторы, чувствительные к гамма-излучению.

11.5 НЕЙТРОНЫ ДРУГИХ ЯДЕРНЫХ РЕАКЦИЙ

Спонтанное деление, вынужденное деление и реакции (α, n) являются первичными источниками нейтронов, наблюдаемых при пассивных измерениях. Однако другие реакции, например, такие как (γ, n), (n, n') и ($n, 2n$), могут иметь место в образце или детекторной сборке и влиять на наблюдаемую скорость счета. В данном разделе вкратце описаны эти реакции. Примеры таких реакций даны в табл. 11.6. Такие реакции более важны для активных измерений неразрушающего анализа; подробную информацию об этом можно найти в [21].

Таблица 11.6 – Другие ядерные реакции, которые могут влиять на пассивный счет нейтронов

Источник излучения	Пороговая энергия, МэВ [28]	Материал мишени	Реакция	Испускаемое излучение	Выделяемая энергия [28]
Гамма-квант	1,665	Бериллий	(γ, n)	Нейтрон	$8(E_\gamma - 1,665)/9$ МэВ
Гамма-квант	2,224	Дейтерий	(γ, n)	Нейтрон	$(E_\gamma - 2,224)/2$ МэВ
Нейтрон	0	Водород	(n, γ)	Гамма-квант	2,224 МэВ
Протон	1,880	Литий-7	(p, n)	Нейтрон	≥ 30 кэВ
Протон	1,019	Тритий	(p, n)	Нейтрон	≥ 0 кэВ
Нейтрон	0,1-1,0	Свинец	(n, n')	Нейтрон	
Нейтрон	0,1-1,0	Вольфрам	(n, n')	Нейтрон	
Нейтрон	0,1-1,0	Уран	(n, n')	Нейтрон	
Нейтрон	1,851	Бериллий	($n, 2n$)	Нейтроны	
Нейтрон	3,338	Дейтерий	($n, 2n$)	Нейтроны	
Нейтрон	5,340	Вольфрам	($n, 2n$)	Нейтроны	

Реакция (γ, n) может образовать нейтроны в любом элементе, если энергия гамма-излучения достаточно высока. Обычно минимальная пороговая энергия (~8 МэВ) гораздо больше, чем энергия гамма-квантов, излучаемых радиоактивными нуклидами. Однако пороговые энергии реакции (γ, n) для бериллия (1,66 МэВ) и дейтерия (2,22 МэВ) аномально низкие. Таким образом, можно создать фотонейтронный источник, окружая относительно интенсивные, долгоживущие гамма-источники большой энергии, такие как ^{124}Sb или ^{226}Ra , оболочкой из бериллия или D_2O . Подробный список фотонейтронных источников приведен в табл. 4.3 работы [21]. При использовании пассивного анализа необходимо помнить, что мгновенные гамма-кванты деления или гамма-кванты некоторых реакций (α, n) могут образовывать дополнительные нейтроны, если конструкция детектора содержит бериллий или дейтерий. Или, наоборот, нейтроны могут захватываться в водороде, образуя дейтерий и гамма-кванты с энергией 2,22 МэВ. Эти случаи включены в табл. 11.6.

Неупругое рассеяние нейтронов (n, n') может иметь место на тяжелых ядрах при энергии нейтронов приблизительно от 0,1 до 1,0 МэВ или больше. Эта реакция возможна, если ядро мишени имеет уровни энергии достаточно низкие для того, чтобы возбудиться нейтроном. Вероятность такой реакции невысока, и число присутствующих нейтронов не меняется. Тем не менее средняя энергия нейт-

ронов в материале будет уменьшаться быстрее, чем можно было бы ожидать только при упругом рассеянии.

Реакция $(n,2n)$ может увеличить число присутствующих нейтронов, но пороговая энергия в большинстве элементов находится в области 10 МэВ. Для дейтерия, бериллия и вольфрама пороги ниже, однако число дополнительно образовавшихся нейтронов скорее всего будет невелико. Вероятность реакций $(n,2n)$ следует принимать во внимание только в том случае, если известно, что нейтроны обладают высокой энергией при наличии дейтерия, бериллия или вольфрама и если измеряемые скорости счета совпадений очень низкие. В таких случаях наблюдаемый отклик может усиливаться.

11.6 ИЗОТОПНЫЕ НЕЙТРОННЫЕ ИСТОЧНИКИ

В лабораторной практике используют компактные переносные нейтронные источники с целью проверки работы приборов, предназначенных для анализа, или с целью облучения образцов для получения других наведенных сигналов. Для целей учета или безопасности важно иметь источники, не содержащие плутоний или уран, или содержащие их в малом количестве. Такие источники могут быть изготовлены с использованием других изотопов, излучающих нейтроны в результате спонтанного деления или реакции (α,n) между мощными альфа-излучающими изотопами и веществами, состоящими из элементов с низким атомным номером.

Таблица 11.7 – Характеристики ^{252}Cf

Полный период полураспада	2,646 года
Период полураспада для альфа-распада	2,731 года
Период полураспада для спонтанного деления	85,5 года
Выход нейтронов	$2,34 \times 10^{12}$ нейтр./с·г
Выход гамма-квантов	$1,3 \times 10^{13}$ γ /с·г
Выход альфа-частиц	$1,9 \times 10^{13}$ α /с·г
Средняя энергия нейтронов	2,14 МэВ
Средняя энергия гамма-квантов	1 МэВ
Средняя энергия альфа-частиц	6,11 МэВ
Нейтронная активность	$4,4 \times 10^9$ нейтр./с·Ки
Мощность дозы нейтронного излучения	2300 бэр/ч·г на расстоянии 1 м
Мощность дозы гамма-излучения	140 бэр/ч·г на расстоянии 1 м
Конверсия	558 Ки/г
Удельная тепловая мощность	38,5 Вт/г
Средняя множественность нейтронов спонтанного деления	3,757
Средняя множественность гамма-квантов спонтанного деления	8

Калифорний-252 является наиболее широко используемым источником нейтронов спонтанного деления; он может иметь очень маленькие размеры и все же быть мощным источником в течение длительного периода времени. В табл. 11.7 приведены некоторые свойства ^{252}Cf ; спектры испускаемых им мгновенных нейтронов и гамма-квантов показаны на рис. 11.2 и 11.3. В некоторых практических случаях важно помнить, что нейтроны ^{252}Cf испускаются со средней множественностью, равной 3,757. Поэтому они сильно коррелированы во времени и будут генерировать события совпадений.

Источники, излучающие случайные, некоррелированные нейтроны, могут быть изготовлены путем смешивания таких альфа-излучателей, как ^{238}Pu или ^{241}Am , с бериллием, литием, фтором или другими элементами, с которыми возможны реакции (α, n) .

В табл. 11.8 [1, 26, 36] обобщены характеристики наиболее распространенных источников нейтронов на основе реакции (α, n) . Одной из наиболее важных характеристик при практическом применении является период полураспада тяжелого элемента, испускающего альфа-частицы. Источники, перечисленные в табл. 11.8, имеют длительные периоды полураспада, за исключением $^{210}\text{PoBe}$.

Другой важной характеристикой является энергетический спектр нейтронов конкретного источника. В некоторых случаях важно иметь источник, испускающий нейтроны высокой энергии, которые обладают высокой проникающей способностью. В других случаях может оказаться важным избежать энергий нейтронов, достаточно высоких для деления изотопов плутония или урана (то есть такой источник должен обеспечивать "подпороговую" подсветку) или для возбуждения реакции $(n, 2n)$.

В настоящее время чаще других используются нейтронные источники $^{241}\text{AmBe}$ и $^{241}\text{AmLi}$, типичные нейтронные энергетические спектры которых показаны на рис. 11.4 и 11.5. Энергетические спектры могут в какой-то степени изменяться из-за наличия примесных элементов или неравномерного смешивания. (Кроме того, спектры нейтронов могут слегка изменять свою форму во времени, в зависимости от конструкции источника и его состава). Обратите внимание на то, что источники AmLi обычно изготавливаются путем смешивания $^{241}\text{AmO}_2$ с оксидом лития и что реакции (α, n) на кислороде дают вклад в спектр в виде высокоэнергетического "хвоста".

Источники $^{241}\text{AmBe}$ компактны, относительно недороги и не нуждаются в громоздкой защите от гамма-излучения. Однако высокоэнергетический спектр нейтронов вызывает реакции $(n, 2n)$, которые будут давать вклад в скорость счета совпадений. Источники $^{241}\text{AmLi}$ менее компактны, стоят дороже и требуют вольфрамовой защиты.

Таблица 11.8 – Характеристики некоторых изотопных источников на основе реакции (α, n)

Источник	Период полураспада, лет [1]	Средняя энергия альфа-частиц, МэВ [1]	Средняя энергия нейтронов, МэВ [1]	Максимальная энергия нейтронов, МэВ [26]	Доза гамма-излучения на расстоянии 1 м от 10^6 н/с, мбэр/ч [36]	Кюри на грамм*	Выход, 10^6 н/с-Ки [36]
$^{210}\text{PoBe}$	0,38	5,3	4,2	10,9	0,01	4490	2-3
$^{226}\text{RaBe}$	1600	4,8	4,3	10,4	60	1	0-17
$^{238}\text{PuBe}$	87,74	5,49	4,5	11,0	0,006	17	2-4
$^{238}\text{PuLi}$	87,74	5,49	0,7	1,5	~1	17	0,07
$^{238}\text{PuF}_4$	87,74	5,49	1,3	3,2	~1	17	0,4
$^{238}\text{PuO}_2$	87,74	5,49	2,0	5,8	~1	17	0,003
$^{239}\text{PuBe}$	24 120	5,15	4,5	10,7	6	0,06	1-2
$^{239}\text{PuF}_4$	24 120	5,15	1,4	2,8	~1	0,06	0,2
$^{241}\text{AmBe}$	433,6	5,48	5,0	11,0	6	3,5	2-3
$^{241}\text{AmLi}$	433,6	5,48	0,3	1,5	2,5	3,5	0,06
^{241}AmB	433,6	5,48	2,8	5,0		3,5	
^{241}AmF	433,6	5,48	1,3	2,5		3,5	

*(Выход альфа-частиц/с-г) / ($3,7 \times 10^{10}$ Бк/Ки)

Из-за своего низкоэнергетического нейтронного спектра они находят широкое применение в качестве источников подпороговой подсветки при активном анализе, а также как контрольные источники случайных нейтронов при пассивной регистрации совпадений. В последнем случае важно знать о возможности присутствия примесей плутония в америции, что может вызвать появление нейтронов совпадений от его спонтанного деления.

Источники на основе реакции (α, n) испускают также гамма- и бета-излучение, и во многих случаях доза, наблюдаемая за пределами контейнера, определяется этим гамма-излучением. (Для сравнения: мощность эквивалентной дозы нейтронного излучения от источника с потоком 10^6 нейтр./с составляет примерно 1 мбэр/ч на расстоянии 1 м). Поэтому важным критерием выбора источника

может быть выход нейтронов источника на основе реакции (α, n) относительно его полного радиационного выхода в кюри. Это отношение приведено в последнем столбце табл. 11.8. Из-за высокого выхода гамма-квантов некоторые источники на основе реакции (α, n) следует упаковывать, используя защитный материал. Например, источники $^{241}\text{AmLi}$ помещаются в вольфрам толщиной 0,64-0,95 см для защиты от интенсивных гамма-квантов с энергией 60 кэВ, образующихся при альфа-распаде америция.

11.7 ВЫВОДЫ

Какие же свойства нейтронного излучения могут быть использованы для измерения количества отдельных изотопов? Ниже в обобщенном виде приведены некоторые важные характеристики.

1. Нечетно-четный эффект при спонтанном делении означает, что только воспроизводящие изотопы, такие, например, как ^{238}U , ^{238}Pu , ^{240}Pu и ^{242}Pu являются сильными излучателями высокоэнергетических нейтронов (со средней энергией 2 МэВ). Для металлических образцов плутония полная интенсивность испускания нейтронов обычно непосредственно связана с массами присутствующих четных изотопов (без учета эффектов саморазмножения в образце — прим. пер.). Это также верно для металлического урана, хотя для практического анализа требуются килограммовые количества урана из-за более низкой интенсивности испускания нейтронов.

2. Множественность мгновенных нейтронов ($\nu = 2-3$) означает, что метод счета совпадений может обеспечить почти уникальную возможность обнаружения четных изотопов. Однако различие их множественности не настолько велико, чтобы провести дискриминацию между ними.

3. Регистрация мгновенных гамма-квантов деления вместе с нейтронами позволяет значительно увеличить чувствительность прибора. Однако разное поведение нейтронов и гамма-квантов в матрице образца и в детекторе создает дополнительные трудности связи измеренного отклика с массой образца. Поэтому такой подход не рекомендуется для широкого применения. Использование только мгновенного гамма-излучения — почти нетронутая область исследований, но связь измеренного отклика с массой образца является, вероятно, такой же сложной проблемой.

4. Выходы запаздывающих нейтронов слишком низки для пассивного анализа. Запаздывающие гамма-кванты обычно не регистрируются нейтронными детекторами, но вносят вклад в отклик сцинтилляторов. Как запаздывающие нейтроны, так и запаздывающие гамма-кванты очень важны для активного, но не пассивного анализа.

5. Делящиеся изотопы, например, такие как ^{235}U и ^{239}Pu , можно анализировать либо с помощью активных методов, либо косвенно с помощью пассивного анализа смежных воспроизводящих изотопов, если изотопный состав образца известен.

6. Реакции (α, n) позволяют проводить качественные пассивные анализы таких соединений, как $^{238}\text{PuO}_2$ и $^{234}\text{UF}_6$. И снова, вклад других изотопов может быть учтен из известного изотопного состава. Реакции (α, n) могут привести также к нежелательному пассивному излучению, усложняющему анализ. Для дискриминации нейтронов (α, n)-реакций часто используется счет нейтронных совпадений. Принципы и способы применения этих методов описаны в главах 14-17.

ЛИТЕРАТУРА

1. C.M. Lederer and V.S. Shirley, Eds., *Table of Isotopes*, 7th ed. (John Wiley & Sons, Inc., New York, 1978).
2. R.T. Perry and W.B. Wilson, "Neutron Production from (α, n) Reactions and Spontaneous Fission in ThO_2 , UO_2 , and $(\text{U, Pu})\text{O}_2$ Fuels," Los Alamos National Laboratory report LA-8869-MS (June 1981).
3. D.L. Johnson, "Evaluation of Neutron Yields from Spontaneous Fission of Transuranic Isotopes," *Transactions of the American Nuclear Society* 22, 673 (1975).
4. P. Fieldhouse, D.S. Mather, and E.R. Culliford, "The Spontaneous Fission Half-Life of ^{240}Pu ," *Journal of Nuclear Energy* 21, 749 (1967).
5. C. Budtz-Jorgensen and H.H. Knitter, "Neutron-Induced Fission Cross Section of Plutonium-240 in the Energy Range from 10 keV to 10 MeV," *Nuclear Science and Engineering* 79, 380 (1981).
6. Evaluated Nuclear Data File ENDF/B-V (available from and maintained by the National Nuclear Data Center at Brookhaven National Laboratory).
7. E.K. Hyde, *The Nuclear Properties of the Heavy Elements, III, Fission Phenomena* (Dover Publications, New York, 1971).
8. J.O. Newton, "Nuclear Properties of the Very Heavy Elements," *Progress in Nuclear Physics* 4, 234 (1955).
9. J.A. Wheeler, in *Niels Bohr and the Development of Physics* (Pergamon Press, London, 1955), p.166.
10. J.W. Boldeman, D. Culley, and R. Cawley, "The Fission Neutron Spectrum from the Spontaneous Fission of ^{252}Cf ," *Transactions of the American Nuclear Society* 32, 733 (1979).
11. W.P. Poenitz and T. Tamura, "Investigation of the Prompt Neutron Spectrum for Spontaneously-Fissioning ^{252}Cf ," Proc. Int. Conf. Nucl. Data Sci. Technol., Antwerp, Belgium, Sept. 1982, p.465.
12. D.G. Madland and J.R. Nix, "New Calculation of Prompt Fission Neutron Spectra and Average Prompt Neutron Multiplicities," *Nuclear Science and Engineering* 81, 213 (1982).
13. J. Terrell, "Neutron Yields from Individual Fission Fragments," *Physical Review* 127, 880 (1962).
14. W.G. Davey, "An Evaluation of the Number of Neutrons Per Fission for the Principal Plutonium, Uranium, and Thorium Isotopes," *Nuclear Science and Engineering* 44, 345 (1971).

15. J.W. Boldeman and M.G. Hines, "Prompt Neutron Emission Probabilities Following Spontaneous and Thermal Neutron Fission," *Nuclear Science and Engineering* 91, 114 (1985).
16. D.A. Hicks, J. Ise, and R. Pyle, *Physical Review* 101, 1016 (1956).
17. M.S. Zucker and N. Holden, "Parameters for Several Plutonium Nuclides and ^{252}Cf of Safeguards Interest," Proc. Sixth Annual Symp. ESARDA, Venice, 1984, p.341.
18. J. Terrell, "Distribution of Fission Neutron Numbers," *Physical Review* 108, 783 (1957).
19. A. Gavron and Z. Fraenkel, "Neutron Correlations in Spontaneous Fission of ^{252}Cf ," *Physical Review C* 9, 623 (1974).
20. H.R. Bowman, S.G. Thompson, and J.O. Rasmussen, "Gamma-Ray Spectra from Spontaneous Fission of ^{252}Cf ," *Physical Review Letters* 12 (8),195 (1964).
21. T. Gozani, *Active Nondestructive Assay of Nuclear Materials, Principles and Applications*, NUREG/CR-0602 (US Nuclear Regulatory Commission, Washington, DC, 1981).
22. G.R. Keepin, *Physics of Nuclear Kinetics* (Addison-Wesley Publishing Co., Inc., Reading, Massachusetts, 1965).
23. T.E. Sampson, "Neutron Yields from Uranium Isotopes in Uranium Hexafluoride," *Nuclear Science and Engineering* 54, 470 (1974).
24. W.B. Wilson, J.E. Stewart, and R.T. Perry, "Neutron Production in UF_6 from the Decay of Uranium Nuclides," *Transactions of the American Nuclear Society* 38, 176 (1981).
25. W.B. Wilson, Los Alamos National Laboratory memorandum T-2-M-1432, to N.Ensslin (1983).
26. R.D. Evans, *The Atomic Nucleus* (McGraw-Hill Book Co., New York, 1955).
27. J.B. Marion and F.C. Young, *Nuclear Reaction Analysis* (John Wiley & Sons, Inc., New York, 1968), p.108.
28. R.J. Howerton, "Thresholds and Q-Values of Nuclear Reactions Induced by Neutrons, Protons, Deuterons, Tritons, ^3He Ions, Alpha Particles, and Photons," Lawrence Livermore National Laboratory report UCRL-50400, V24 (1981).
29. G.J.H. Jacobs and H. Liskien, "Energy Spectra of Neutrons Produced by Alpha Particles in Thick Targets of Light Elements," *Annals of Nuclear Energy* 10, 541 (1983).
30. J.K. Bair and J. Gomez del Campo, "Neutron Yields from Alpha-Particle Bombardment," *Nuclear Science and Engineering* 71, 18 (1979).
31. D. West and A.C. Sherwood, "Measurements of Thick-Target (α,n) Yields from Light Elements," *Annals of Nuclear Energy* 9, 551 (1982).
32. J. Roberts, "Neutron Yields of Several Light Elements Bombarded with Polonium Alpha Particles," U.S. AEC report MDCC-731 (1947).
33. W.B. Wilson and R.T. Perry, "Thick-Target Neutron Yields in Boron and Fluorine," Los Alamos National Laboratory memorandum T-2-M-1835 to N.Ensslin (1987).

34. M.E. Anderson and J.F. Lemming, "Selected Measurement Data for Plutonium and Uranium," Mound Laboratory report MLM-3009 (1982).
35. D. West, "The Calculation of Neutron Yields in Mixtures and Compounds from the Thick Target (α ,n) Yields in the Separate Constituents," *Annals of Nuclear Energy* 6, 549 (1979).
36. Joint Publication Research Center, *Neutron Sources*, JPRS-48421 (Washington, DC, July 1969).

Глава 12

Взаимодействие нейтронов с веществом

Ф. Ринард
(Переводчик Т. С. Лил)

12.1 ВВЕДЕНИЕ

Методы анализа ядерных материалов с помощью нейтронов основаны на их взаимодействии с веществом. Взаимодействие нейтронов с исследуемым веществом влияет на интерпретацию результатов нейтронных измерений и ограничивает количество делящегося материала, которое может безопасно содержаться в измерительном средстве. Регистрация нейтронов основана на некотором определенном типе взаимодействия нейтрона с веществом детектора. Кроме того, неизбежны взаимодействия нейтронов с материалом внешней защиты, которая применяется для обеспечения радиационной безопасности персонала.

В этой главе даны основные сведения по нейтронным взаимодействиям, которые представляют интерес для измерения ядерных материалов. В первой части описываются взаимодействия на микроскопическом уровне, когда отдельные нейтроны взаимодействуют с ядрами. Затем эти понятия обобщаются на макроскопические процессы взаимодействия нейтронов с материалами сложного химического состава.

12.2 МИКРОСКОПИЧЕСКИЕ ВЗАИМОДЕЙСТВИЯ

12.2.1 Понятие сечения взаимодействия

Вероятность какого-то конкретного события, происходящего между нейтроном и ядром, характеризуется сечением взаимодействия. Если большое число нейтронов одинаковой энергии падает на тонкий слой вещества, то одна часть нейтронов пройдет через тонкий слой без взаимодействия, другая — сможет испытать взаимодействия, изменяющие их направление и энергию, а остальные нейтроны не смогут выйти из рассматриваемого образца. Каждое из этих событий имеет определенную вероятность. Например, вероятность того, что нейтрон останется в образце (т.е., нейтрон будет поглощен или захвачен), представляет собой отношение числа нейтронов, которые остались в нем, к числу нейтронов, первоначально падающих на слой вещества. Сечение взаимодействия, в результате которого нейтроны поглощаются в слое вещества, представляет собой вероятность поглощения нейтронов, деленную на поверхностную плотность атомов (число атомов мишени на единицу площади слоя). Таким образом, сечение взаимодействия имеет размерность площади, причем величина сечения взаимодействия составляет очень малую долю одного квадратного сантиметра из-за большого числа

атомов, находящихся на этой площади вещества. Так как этот тип сечения взаимодействия описывает вероятность взаимодействия нейтрона с одним ядром, то оно называется микроскопическим сечением взаимодействия и обозначается символом σ . (Макроскопическое сечение, описывающее взаимодействия нейтронов с массой вещества, определено в разделе 12.3).

Другой подход к пониманию концепции микроскопического сечения взаимодействия заключается в рассмотрении вероятности прохождения нейтрона через тонкий слой вещества с площадью A и числом ядер N в мишени, причем каждое ядро имеет площадь поперечного сечения s . Суммарная площадь всех ядер равна Ns . Вероятность столкновения одного нейтрона с одним ядром приблизительно равна отношению полной площади мишени Ns к площади слоя A . Другими словами, вероятность того, что один нейтрон испытает столкновение с ядром, равна Ns/A или $(N/A)s$, т.е. произведению поверхностной плотности ядер в мишени на площадь поперечного сечения s . Однако на атомном уровне сечение взаимодействия нейтрона представляет собой не просто геометрическую площадь поперечного сечения мишени. Заменяя это сечение s символом σ из предыдущего абзаца, величину σ можно рассматривать как эффективную площадь поперечного сечения данного взаимодействия. Это сечение взаимодействия имеет ту же размерность площади, что и величина площади поперечного сечения s .

Физическая площадь поперечного сечения s одного тяжелого ядра равна приблизительно 2×10^{-24} см². Значения сечений взаимодействия для большинства ядер обычно находятся в интервале между 10^{-27} и 10^{-21} см². Для того чтобы избежать неудобства в работе с такими малыми числами, применяется другая единица площади — барн. По определению, 1 барн = 10^{-24} см², поэтому физическая площадь поперечного сечения одного тяжелого ядра равна приблизительно 2 барна. Многие сечения нейтронных взаимодействий находятся в интервале значений от 0,001 до 1000 барн.

Каждый тип события имеет свои собственные вероятность и сечение взаимодействия. Вероятность каждого типа события не зависит от вероятности других. Поэтому полная вероятность любого события равна сумме отдельных вероятностей каждого типа взаимодействия. Аналогично, сумма всех отдельных сечений взаимодействий равна полному сечению взаимодействия.

12.2.2 Соотношение энергия-скорость для нейтронов

Величина сечения взаимодействия сильно зависит от энергии нейтрона (см. раздел 12.2.4). В данном разделе описывается соотношение между энергией и скоростью нейтрона. Эта связь между ними важна не только для понимания термина сечения взаимодействия, но также и для оценки времени, в течение которого нейтроны могут быть зарегистрированы соответствующими измерительными средствами.

Классическое выражение для кинетической энергии $E = mv^2/2$ является достаточно точным, потому что даже кинетическая энергия 100 МэВ составляет приблизительно одну десятую энергии массы покоя нейтрона (939,55 МэВ). Если скорость выражена в метрах в секунду, а энергия E — в мегаэлектронвольтах (МэВ), то

$$E = 5,227 \times 10^{-15} v^2 \quad (12.1)$$

$$\text{и } v = 1,383 \times 10^7 E^{1/2}. \quad (12.2)$$

График этой зависимости, представленный на рис. 12.1, можно применять на практике. Например, график показывает, что нейтрон с энергией 1 МэВ имеет скорость $1,383 \times 10^7$ м/с и, следовательно, приблизительно за 11 нс пересечет 15 см рабочей области детектора, применяемого для анализа. Тепловой нейтрон с энергией 0,025 эВ (см. раздел 12.2.3) имеет скорость 2187 м/с и пересечет ту же область приблизительно за 70 мкс.

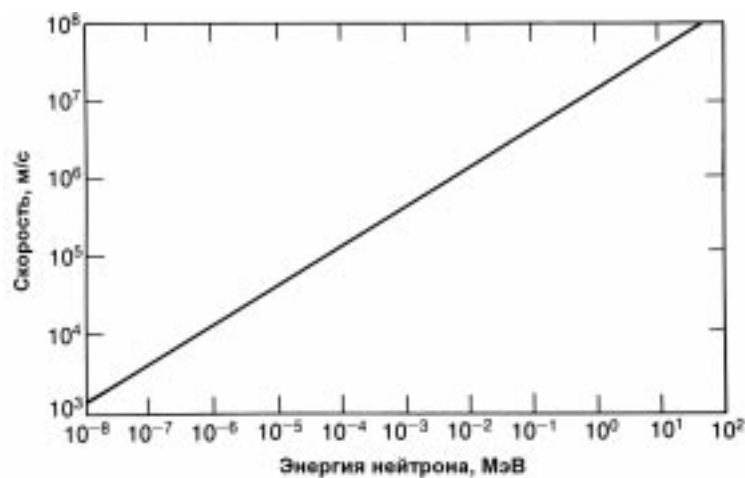


Рис. 12.1. Соотношение между скоростью и кинетической энергией нейтрона

12.2.3 Типы взаимодействий

Существует много типов взаимодействия нейтрона с ядром. На рис. 12.2 показаны типы взаимодействий и их сечения. На этом рисунке каждый тип взаимодействия состоит из всех взаимодействий, которые находятся ниже и соединены с ним. Полное сечение взаимодействия σ_t выражает вероятность того, что имеет место какое-то из этих взаимодействий.

Можно пользоваться простой системой обозначений, чтобы кратко указать нужный тип взаимодействия. Если нейтрон n падает на ядро мишени T , в результате чего образуется ядро R и вылетает частица g , то это взаимодействие обозначается как $T(n,g)R$. Снаружи скобок показаны тяжелые ядра. Для обозначения типа взаимодействия безотносительно к участвующим в реакции ядрам указывается только часть обозначения в скобках. Например, реакция (n,p) описывает конкретное взаимодействие $^{10}\text{B}(n,p)^{10}\text{Be}$.

Взаимодействие может быть одним из двух основных типов: рассеянием или поглощением. Когда нейтрон рассеивается на ядре, его скорость и направление изменяются, но ядро остается с тем же самым числом протонов и нейтронов, которое оно имело до взаимодействия. Ядро может перейти в возбужденное состоя-

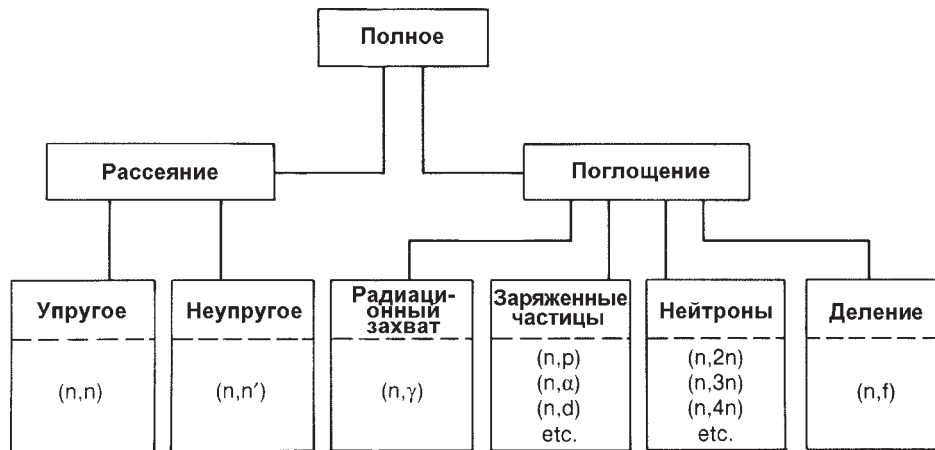


Рис. 12.2. Классификация типов нейтронных взаимодействий. Буквы, разделенные запятыми в скобках, показывают вызывающие реакцию и образующиеся частицы

ние, что приведет в конечном итоге к испусканию излучения. Если нейтрон поглощается ядром, то может испускаться широкий спектр излучения или произойти деление ядра.

Рассеяние может быть упругим и неупругим. При упругом рассеянии суммарная кинетическая энергия нейтрона и ядра не изменяется. В процессе взаимодействия часть кинетической энергии нейтрона передается ядру. Для нейтрона с кинетической энергией E , который сталкивается с ядром с массовым числом A , в среднем энергетические потери равны $2EA/(A+1)^2$. Это соотношение показывает, что для уменьшения скорости нейтронов (т.е., для их замедления) при наименьшем числе упругих столкновений следует применять ядра мишени с относительно небольшим массовым числом A . При использовании водорода, $A = 1$, средние энергетические потери имеют самое большое значение, равное $E/2$. Нейтрон с начальной кинетической энергией 2 МэВ после одного упругого рассеяния будет иметь (в среднем) кинетическую энергию 1 МэВ, после второго такого рассеяния — 0,5 МэВ, и так далее. Для получения кинетической энергии со значением 0,025 эВ должно было бы произойти 27 упругих рассеяний. (Нейтрон с кинетической энергией 0,025 эВ находится почти в тепловом равновесии со своей окружающей средой и считается "тепловым нейтроном". Энергия $E = 0,025$ эВ соответствует температуре $T = 20^\circ\text{C}$, как это следует из соотношения $E = kT$, где k — постоянная Больцмана). После n упругих столкновений кинетическая энергия нейтрона изменится от E_0 до E_n , где $E_n = E_0[(A^2 + 1)/(A + 1)^2]^n$. Таким образом, для достижения значения кинетической энергии E_n нейтрону с первоначальной энергией E_0 требуется в среднем n столкновений, где $n = \log(E_n/E_0)/\log[(A^2 + 1)/(A + 1)^2]$. Примеры среднего числа столкновений, которое требуется для "термализации" нейтрона с кинетической энергией 2 МэВ в некоторых материалах, приведены в табл. 12.1.

Неупругое рассеяние похоже на упругое рассеяние, за исключением того, что ядро переходит в дискретное возбужденное состояние, которое снимается, в конечном счете, в результате испускания излучения. В результате неупругого рассе-

яния полная кинетическая энергия вылетающего нейтрона и ядра меньше кинетической энергии падающего нейтрона. Часть первоначальной кинетической энергии идет на переход ядра в возбужденное состояние. Средние энергетические потери зависят от энергетических уровней ядра. Простым результатом таких взаимодействий нейтрона с веществом является уменьшение скорости нейтрона и изменение направления его движения. Если все возбужденные состояния ядра имеют слишком высокую энергию по сравнению с энергией падающего нейтрона, то неупругое рассеяние невозможно. В частности, ядро водорода не имеет возбужденных состояний, поэтому в случае водорода могут происходить только упругие рассеяния. Вообще говоря, процесс рассеяния замедляет или уменьшает энергию нейтронов. На этом принципе основаны некоторые нейтронные детекторы (например, детекторы протонов отдачи).

Таблица 12.1 – Среднее число столкновений, необходимое для снижения энергии нейтрона от 2 МэВ до 0,025 МэВ в результате упругого рассеяния

Элемент	Массовое число	Число столкновений
Водород	1	27
Дейтерий	2	31
Гелий	4	48
Бериллий	9	92
Углерод	12	119
Уран	238	2175

Наряду с рассеянием на ядре, нейтрон может испытать поглощение или захват. Различные типы испускаемых вслед за этим частиц показаны на рис. 12.2. Ядро может изменить свою внутреннюю структуру и испустить несколько гамма-квантов. Могут также испускаться заряженные частицы, чаще всего - протоны, дейтоны и альфа-частицы. Кроме того, ядра могут избавляться от избыточных нейтронов. Эмиссия только одного нейтрона ничем не отличается от события рассеяния. Если испускаются несколько нейтронов, причем число нейтронов, присутствующих в веществе, больше, чем было до взаимодействия, то, говорят, что имело место размножение нейтронов. Наконец, возможно деление ядра, приводящее к образованию двух и более осколков деления (ядер с промежуточными массовыми числами) и нескольких нейтронов (см. главу 11).

Многие приборы, используемые для контроля ядерных материалов, содержат нейтронные детекторы, основанные на реакции поглощения. Отсутствие электрического заряда у нейтрона затрудняет его непосредственное обнаружение. Нейтрон должен сначала поглотиться ядром материала детектора, которое затем испускает заряженную частицу (такую, как протон или дейтон). Обычно в детекторах используются гелий-3, уран-235 и бор-10, поскольку они имеют большие сечения взаимодействия с образованием заряженных частиц под действием медленных нейтронов.

В случае, если требуется только замедлить нейтроны, то следует избегать их поглощения. Например, водород является лучшим замедлителем, чем дейтерий (т.е., в случае водорода требуется меньше столкновений для достижения заданной низкой скорости). Однако водород обладает большим сечением поглощения нейтронов. В результате дейтерий дает больше тепловых нейтронов, чем водород, и он более предпочтителен в качестве замедляющего материала.

Сечения взаимодействия, связанные с различными типами взаимодействий, описанными выше, можно обозначить следующим образом:

σ_t — полное сечение взаимодействия ($\sigma_s + \sigma_a$);

σ_s — полное сечение рассеяния ($\sigma_{el} + \sigma_i$);

σ_{el} или $\sigma_{n,n}$ — сечение упругого рассеяния;

σ_i или $\sigma_{n,n'}$ — сечение неупругого рассеяния (с возбуждением уровней ядра);

σ_a или σ_c — сечение поглощения или захвата;

σ_{ne} — полное сечение неупругих процессов взаимодействия (кроме сечения упругого рассеяния), $\sigma_t - \sigma_{el}$;

$\sigma_{n,g}$ — сечение поглощения или радиационного захвата;

σ_f или $\sigma_{n,f}$ — сечение деления;

$\sigma_{n,p}$ — сечение реакции (n,p).

12.2.4 Зависимость сечения взаимодействия от энергии

Все сечения взаимодействия, описанные выше, изменяются в зависимости от энергии нейтрона и типа ядра мишени, причем иногда очень существенно. В этом разделе рассмотрены некоторые обобщения, касающиеся зависимости сечения взаимодействия от энергии, и приведены данные для нескольких важных изотопов [1].

На рис. 12.3 представлено полное сечение ^{239}Pu для падающих нейтронов с энергией от 0,001 эВ до 10 МэВ. Заметим, что, как правило, сечение взаимодействия уменьшается с увеличением энергии. При низких значениях энергии, ниже 1 эВ, сечение упругого рассеяния приблизительно постоянно, тогда как сечение поглощения нейтрона обратно пропорционально скорости нейтрона, т.е. $1/v$. Поэтому при низких энергиях полное сечение взаимодействия может быть приблизительно постоянным или может уменьшаться с ростом энергии в зависимости от того, какой тип событий является доминирующим. Например, в случае ядра ^{239}Pu преобладает взаимодействие с поглощением нейтронов, поэтому полное сечение взаимодействия уменьшается по закону $1/v$. Аналогичное поведение наблюдается для большинства ядер с малыми и промежуточными массовыми числами. На рис. 12.4 и 12.5 показано поведение полного сечения взаимодействия для бора и кадмия при низких энергиях нейтрона. Необычно высокие значения сечений взаимодействия с поглощением нейтрона для этих двух веществ делают их полезными в качестве поглотителей тепловых нейтронов.

При более высоких энергиях в сечении взаимодействия могут иметь место резкие пики, которые накладываются на общую тенденцию поведения по закону $1/v$. Эти пики называются резонансами и соответствуют энергиям, при которых возрастает сечение взаимодействия нейтрона с ядрами. Например, резонанс происходит, если ядро и захваченный нейтрон образуют "компаунд"-ядро (составное ядро), а энергия, которую вносит в ядро нейтрон, близка к энергии возбужденного состояния составного ядра.

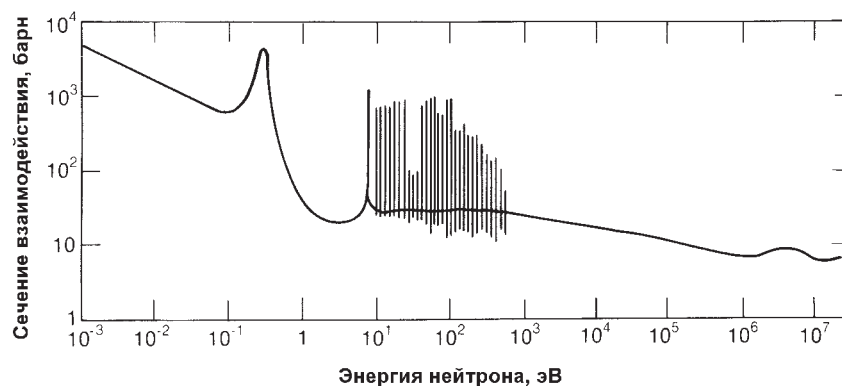


Рис. 12.3. Полное сечение взаимодействия нейтронов с ^{239}Pu

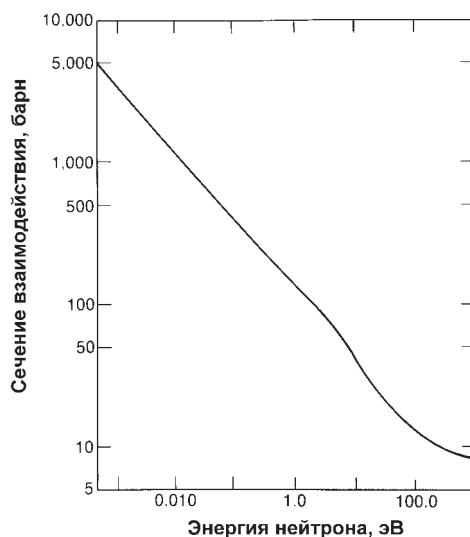


Рис. 12.4. Полное сечение взаимодействия нейтронов с бором в области низких энергий [1]

Для тяжелых ядер в области энергий нейтронов, составляющих несколько электронвольт, появляются высокие и узкие резонансы. Для энергий в области килоэлектронвольт резонансы могут быть слишком близкими и трудноразрешимыми. В мегаэлектронвольтной области резонансы более редкие и очень широкие, в результате чего сечения взаимодействия становятся гладкими и плавными. Для легких ядер резонансы появляются только в мегаэлектронвольтной области, они широкие и относительно небольшие. Для ядер с промежуточными массовыми числами (такими, как кадмий, никель, железо) резонансы можно обнаружить ниже 1 кэВ. Эти резонансы имеют амплитуду и ширину в промежуточном диапа-

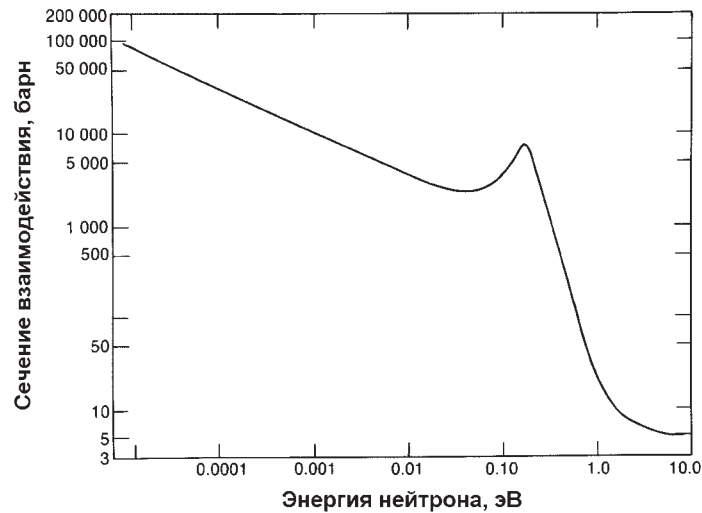


Рис. 12.5. Полное сечение взаимодействия нейтронов с кадмием в области низких энергий [1]

зоне значений по сравнению с соответствующими величинами для легких и тяжелых ядер.

Некоторые исключения из общих тенденций имеются в ядрах ^1H и ^2H , у которых вообще нет резонансов, а также в ядрах с магическими числами протонов или нейтронов, поведение которых может быть таким же, как у легких ядер, несмотря на фактическое различие массовых чисел. На практике необходимо пользоваться таблицами сечений взаимодействия для рассматриваемых ядер, поскольку не существует надежного метода вычисления сечений взаимодействия. Некоторые микроскопические сечения взаимодействия представлены в табл. 12.2 раздела 12.3.

Некоторые сечения для нейтронных реакций вынужденного деления ядер, важные для неразрушающего контроля, показаны на рис. 12.6. Делящиеся изотопы ^{235}U и ^{239}Pu имеют большие сечения деления (приблизительно 1000 барн) при делении тепловыми или надтепловыми нейтронами. Для быстрых нейтронов с энергиями от 10 кэВ до 10 МэВ эти сечения уменьшаются до 1-2 барн. Воспроизводящие изотопы ^{238}U и ^{240}Pu имеют пренебрежимо малые сечения реакции деления в области низких энергий нейтронов, но обладают порогом взаимодействия при кинетической энергии нейтрона около 1 МэВ. Выше 1 МэВ сечения деления быстрыми нейтронами воспроизводящих изотопов (^{238}U и ^{240}Pu) сравнимы с аналогичными величинами для делящихся изотопов (^{235}U и ^{239}Pu).

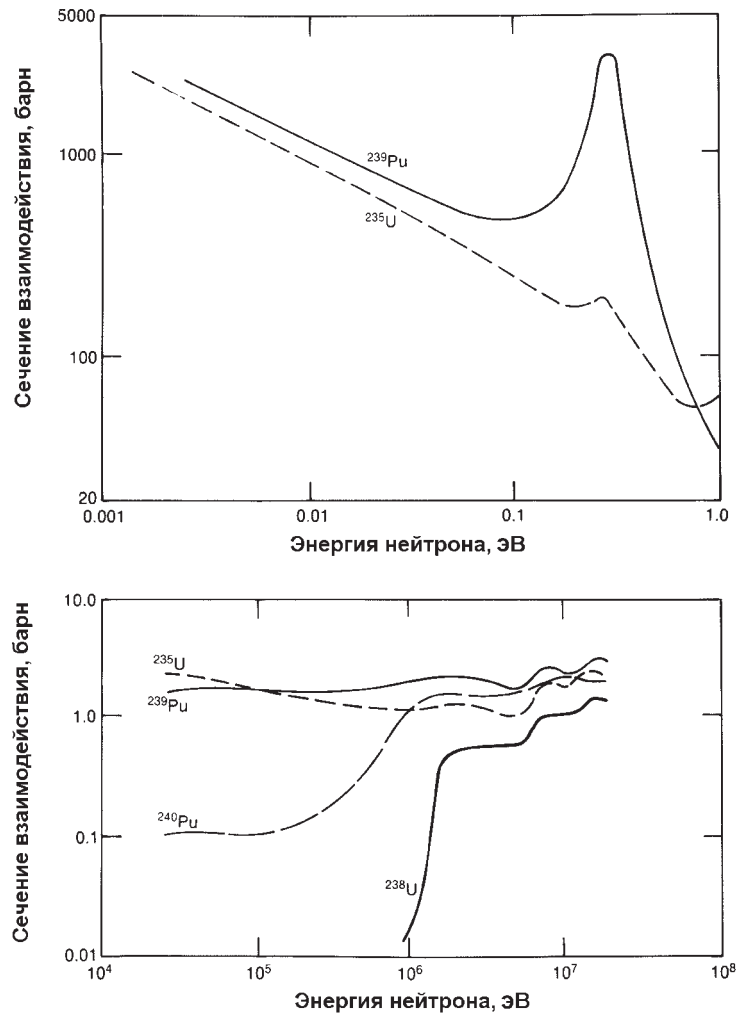


Рис. 12.6. Сечения деления некоторых важных делящихся (^{235}U и ^{239}Pu) и воспроизводящих (^{238}U и ^{240}Pu) изотопов [1]

12.3 МАКРОСКОПИЧЕСКИЕ ВЗАИМОДЕЙСТВИЯ

12.3.1 Макроскопические сечения

Несмотря на то, что изучение рассмотренных типов взаимодействия нейтрона с отдельным ядром на микроскопическом уровне позволяет понять процесс взаимодействия, на самом деле измерения выполняются на образцах значительной толщины, которые часто содержат смесь элементов. Эти дополнительные особенности описываются с помощью макроскопических сечений, соответствующих реальным образцам материалов.

Определение макроскопического сечения взаимодействия можно получить, рассматривая прохождение параллельного пучка нейтронов через толстый образец. Толстый образец можно рассматривать как ряд атомных слоев, для каждого из которых можно применить результаты, полученные на основе понятия микроскопического сечения. Интегрируя по количеству слоев, которые содержатся в толщине x образца, получаем выражение для интенсивности $I(x)$ нейтронов, прошедших слой толщиной x без взаимодействия:

$$I(x) = I_0 e^{-N\sigma_t x}, \quad (12.3)$$

где I_0 – интенсивность первоначального падающего пучка;

N – плотность атомов;

σ_t – полное сечение взаимодействия (выводящее нейтроны из первичного пучка в результате процессов рассеяния или поглощения).

На рис. 12.7 показана интенсивность нейтронов, прошедших слой вещества толщиной x без взаимодействий. Заметим, что отношение $I(x)/I_0$ зависит от энергии нейтронов через зависимость от энергии микроскопического полного сечения взаимодействия σ_t .

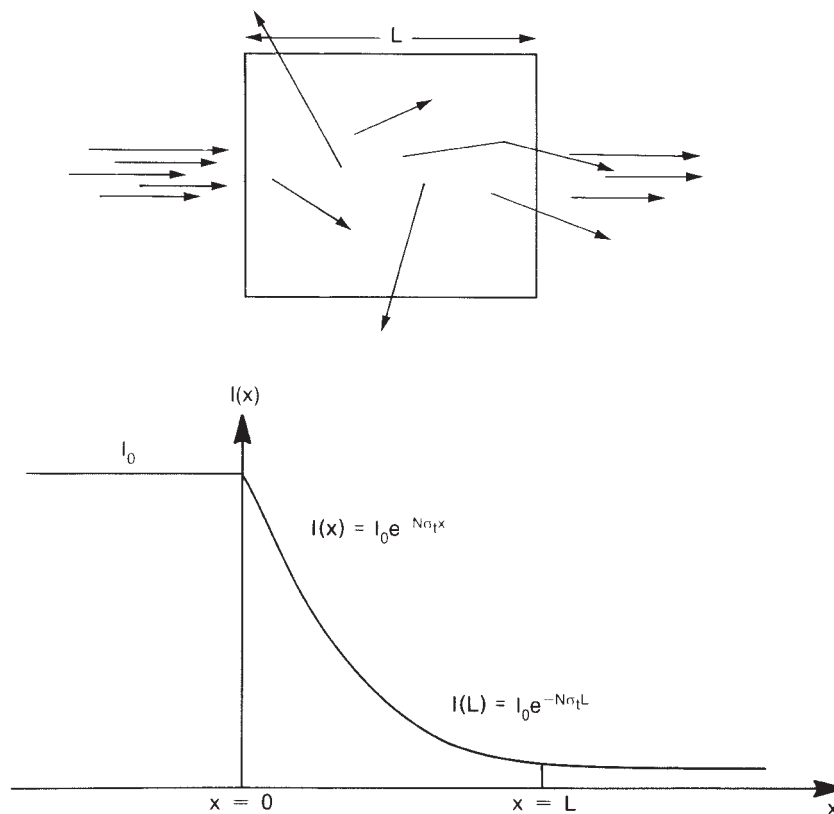


Рис. 12.7. Экспоненциальное ослабление интенсивности параллельного пучка при прохождении слоя вещества без взаимодействий

Выражение, аналогичное уравнению (12.3), применяется также для вычисления ослабления гамма-квантов. В этом случае достаточно одного акта взаимодействия, чтобы гамма-кванты были поглощены и, таким образом, удалены из параллельного пучка. Для низкоэнергетических нейтронов наиболее вероятным событием является упругое рассеяние. Хотя уравнение (12.3) дает интенсивность нейтронов, не испытавших взаимодействия при прохождении слоя толщиной x , реальное число нейтронов, которые можно обнаружить, может быть значительно больше вследствие многократного рассеяния, размножения или конечности входной угловой апертуры детектора.

Полное макроскопическое сечение взаимодействия $\Sigma_t = N\sigma_t$. Эта величина имеет размерность см^{-1} (см. выше уравнение (12.3)) и аналогична линейному коэффициенту ослабления гамма-квантов. Если интерес представляет только один определенный тип взаимодействия, то макроскопическое сечение можно определить только для этого одного типа взаимодействия, заменив полное сечение микроскопическим сечением этого типа взаимодействия. Для количественных расчетов понятие макроскопического сечения взаимодействия нейтронов с веществом используется реже, чем аналогичное понятие линейного коэффициента ослабления гамма-квантов, из-за сложности процесса многократного рассеяния и других эффектов, о которых было рассказано в предыдущем параграфе.

Если образец представляет собой химическое соединение из нескольких элементов, то полное макроскопическое сечение взаимодействия является суммой макроскопических сечений отдельных элементов:

$$\Sigma = \Sigma_1 + \Sigma_2 + \Sigma_3 + \dots \quad (12.4)$$

Плотность атомов N_i для каждого i -го элемента задается следующим образом:

$$N_i = \rho N_a n_i / M, \quad (12.5)$$

где ρ — плотность соединения;

M — молекулярная масса соединения;

$N_a = 6,022 \times 10^{23}$ атом/моль — число Авогадро;

n_i — число атомов i -го элемента в одной молекуле.

Из уравнений (12.4) и (12.5) общее выражение для макроскопического сечения взаимодействия можно записать следующим образом:

$$\Sigma = \frac{\rho N_a}{M} (n_1 \sigma_1 + n_2 \sigma_2 + n_3 \sigma_3 + \dots). \quad (12.6)$$

В качестве иллюстрации этих уравнений приведем пример расчетов по данным табл. 12.2. Полное макроскопическое сечение взаимодействия для нейтронов с энергией 1 МэВ в диоксиде урана природного обогащения (плотность 10 г/см^3 , молекулярная масса 270) равно

$$\Sigma_t = \frac{(10)(0,6022)}{270} [0,007(6,84) + (0,993)(7,10) + 2(8,22)] = 0,525 \text{ см}^{-1}. \quad (12.7)$$

Степени 10^{24} и 10^{-24} в уравнении для значений числа Авогадро и сечений взаимодействия были сокращены. Значения сечений взаимодействия были взяты из табл. 12.3 [2], в которой собраны микроскопические и макроскопические сечения

взаимодействия для двух энергий нейтрона: 0,025 эВ (тепловые нейтроны) и 2 МэВ.

Таблица 12.2 – Ядерные данные для диоксида урана природного обогащения

Изотоп	n_i	σ_i при энергии нейтрона 1 МэВ, барн
^{235}U	0,007	6,84
^{238}U	0,993	7,10
^{16}O	2,000	8,22

12.3.2 Длина свободного пробега и скорость реакции

Очень информативной характеристикой прохождения нейтронов через реальные образцы вещества является средняя длина свободного пробега. Она представляет собой среднее расстояние, которое нейтрон проходит между взаимодействиями, и может быть вычислена из уравнения (12.3), в котором $N\sigma_i$ заменяется полным макроскопическим сечением Σ_t . В результате этого получаем, что средняя длина свободного пробега является величиной, обратной макроскопическому сечению взаимодействия:

$$\lambda = 1 / \Sigma_t. \quad (12.8)$$

В случае нейтронов с кинетической энергией 1 МэВ для диоксида урана UO_2 и вычисленного выше значения макроскопического сечения $0,525 \text{ см}^{-1}$ получаем по формуле (12.8) значение средней длины свободного пробега, равное 1,91 см.

Средняя длина свободного пробега применяется для многих количественных оценок в приборостроении и при проектировании защитных экранов:

а) если в приборе пассивного анализа средняя длина свободного пробега нейтронов, испущенных образцом, сравнима с его размерами, то вероятно, что большинство нейтронов вылетят из образца и попадут в область детектирования;

б) если известно число столкновений, необходимых для термализации нейтронов, то можно получить оценку требуемой толщины замедлителя;

в) если толщина защитного экрана в несколько раз превышает среднюю длину свободного пробега нейтрона, то защитный экран соответствует своему назначению. (Поскольку средняя длина свободного пробега является функцией энергии нейтрона, точный расчет достаточно сложен).

С понятием средней длины свободного пробега тесно связано понятие скорости реакции. Если нейтрон движется со скоростью v , то среднее время между его взаимодействиями равно отношению λ/v . Скорость реакции представляет собой частоту, с которой происходят взаимодействия: v/λ или $v\Sigma_t$. Например, для оксида урана при энергии нейтрона 1 МэВ скорость реакции равна $7,26 \times 10^8$ взаимодействий в секунду (в соответствии с уравнениями (12.2) и (12.7)). Однако это не означает, что за секунду произойдет столько столкновений. При каждом столкновении энергия нейтрона уменьшается, и сечение взаимодействия изменяется, в связи с чем изменяется и скорость реакции.

Путь нейтронов в веществе можно смоделировать, используя метод Монте-Карло. На рис. 12.8 показаны несколько траекторий для нейтронов с кинетической энергией 1 МэВ, взаимодействующих с цилиндрами из различных материа-

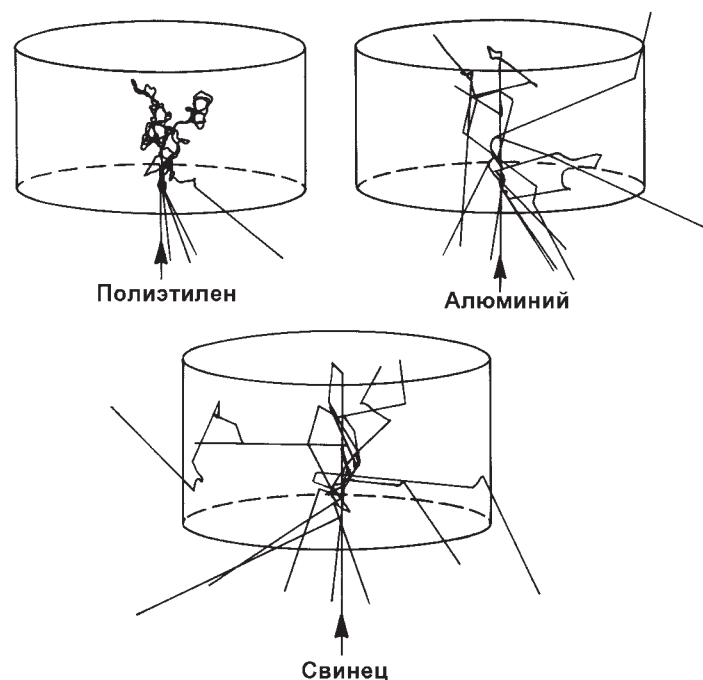


Рис. 12.8. Схема траекторий нейтронов с начальной кинетической энергией 1 МэВ, входящих в цилиндр вещества снизу и затем испытавших рассеяние или поглощение (результаты получены моделированием методом Монте-Карло)

лов. Средняя длина свободного пробега зависит как от типа материала, так и от энергии нейтрона. После каждого столкновения энергия нейтрона уменьшается и, соответственно, изменяется средняя длина свободного пробега нейтрона. Как видно из рис. 12.8, цилиндр из полиэтилена более эффективно препятствует переносу нейтронов, чем цилиндр из тяжелых металлов. Нейтрон теряет большую часть своей энергии при столкновении с легкими ядрами в полиэтилене, вследствие чего средняя длина свободного пробега нейтрона уменьшается, а сечения взаимодействия увеличиваются. Важное свойство полиэтилена заключается в том, что он накапливает большую часть нейтронов на определенной глубине; эти нейтроны испытали достаточное количество столкновений и потеряли почти всю свою кинетическую энергию. Если детектор тепловых нейтронов помещается в эту область, вероятность обнаружения нейтронов становится оптимальной.

12.4 ЭФФЕКТЫ ЗАМЕДЛЕНИЯ В БОЛЬШОМ ОБЪЕМЕ ВЕЩЕСТВА

Часто задачей проектирования является уменьшение или замедление скорости нейтронов в объеме образца, или в объеме детектора, или в них обоих. Напомним, что сечения взаимодействия изменяются по общему закону $1/v$ (см. рис. 12.3 — 12.6). Поэтому задача обычно сводится к увеличению вероятности

взаимодействия. В других случаях, наоборот, необходимо уменьшить взаимодействия, выбрав материал, являющийся плохим замедлителем, либо удалить нейтроны после их замедления, добавив материалы-поглотители, которые поглощают низкоэнергетические нейтроны.

Таблица 12-3 – Нейтронные сечения для распространенных материалов [2]

Материал	Массовое число или молекулярная масса	Плотность, г/см ³	Сечение взаимодействия*							
			E = 0,0253 эВ				E = 1 МэВ			
			σ_t , барн	σ_a , барн	Σ_t , см ⁻¹	Σ_a , см ⁻¹	σ_t , барн	σ_a , барн	Σ_t , см ⁻¹	Σ_a , см ⁻¹
Al	27	2,7	1,61	0,232	0,097	0,014	2,37	0,000	0,143	0,000
B	10	2,3	3845	3843	533	532	2,68	0,189	0,371	0,0262
B	11	2,3	5,28	0,005	0,665	0,0006	2,13	0,000	0,268	0,000
Be	9	9,0	6,35	0,010	3,82	0,0060	3,25	0,003	1,96	0,0018
C	12	1,9	4,95	0,003	0,472	0,0003	2,58	0,000	0,246	0,000
Прир. Са	40,08	1,55	3,46	0,433	0,081	0,101	1,14	0,004	0,027	0,0001
Cd	112	8,7	2470	2462	115,5	115,2	6,50	0,058	0,304	0,0027
Прир. Cl	35,45	Газ	50,2	33,4	Газ	Газ	2,30	0,0005	Газ	Газ
Прир. Cu	63,55	8,94	12,5	3,80	1,06	0,322	3,40	0,011	0,288	0,0009
F	19	Газ	3,72	0,010	Газ	Газ	3,15	0,000	Газ	Газ
Fe	56	7,9	14,07	2,56	1,19	0,217	5,19	0,003	0,441	0,0003
Прир. Gd	157,25	7,95	49153	48981	1496	1491	7,33	0,223	0,223	0,0068
H	1	Газ	30,62	0,33	Газ	Газ	4,26	0,000	Газ	Газ
H	2	Газ	4,25	0,000	Газ	Газ	2,87	0,000	Газ	Газ
He	3	Газ	5337	5336	Газ	Газ	2,87	0,879	Газ	Газ
He	4	Газ	0,86	0,000	Газ	Газ	7,08	0,000	Газ	Газ
Li	6	0,534	938	937	50,3	50,2	1,28	0,230	0,069	0,0123
Li	7	0,534	1,16	0,036	0,053	0,0017	1,57	0,000	0,072	0,0000
Прир. Mg	24,31	1,74	3,47	0,063	0,150	0,0027	2,66	0,001	0,115	0,0000
Mn	55	7,2	14,5	13,2	1,14	1,04	3,17	0,003	0,250	0,0002
N	14	Газ	12,22	1,9	Газ	Газ	2,39	0,021	Газ	Газ
Na	23	0,971	3,92	0,529	0,100	0,0134	3,17	0,000	0,081	0,0000
Ni	59	8,9	23,08	4,58	2,10	0,416	3,66	0,0008	0,322	0,0001
O	16	Газ	3,87	0,000	Газ	Газ	8,22	0,000	Газ	Газ
Pb	204	11,34	11,40	0,18	0,381	0,0060	4,39	0,0033	0,147	0,0001

Окончание таблицы 12.3

Материал	Массовое число или молекулярная масса	Плотность, г/см ³	Сечение взаимодействия*							
			E = 0,0253 эВ				E = 1 МэВ			
			σ_t , барн	σ_a , барн	Σ_t , см ⁻¹	Σ_a , см ⁻¹	σ_t , барн	σ_a , барн	Σ_t , см ⁻¹	Σ_a , см ⁻¹
Pu	238,05	19,6	599,3	562,0	29,72	27,87	6,66	0,190	0,330	0,0094
Pu	239,05	19,6	1021	270	50,4	13,3	7,01	0,026	0,346	0,0013
Pu	240,05	19,6	294	293	14,5	14,4	7,15	0,108	0,352	0,0053
Pu	241,06	19,6	1390	362	68,1	17,7	7,98	0,117	0,391	0,0057
Pu	242,06	19,6	26,7	18,9	1,30	0,922	7,31	0,098	0,357	0,0048
Прир. Si	28,09	2,42	2,24	0,161	0,116	0,0084	4,43	0,001	0,230	0,0001
Th	232	11,3	20,4	7,50	0,598	0,220	7,00	0,135	0,205	0,0040
U	233,04	19,1	587	45,8	29,0	2,26	6,78	0,069	0,335	0,0034
U	234,04	19,1	116	103	5,70	5,07	8,02	0,363	0,394	0,0178
U	235,04	19,1	703	96,9	34,3	4,74	6,84	0,117	0,335	0,0057
U	236,05	19,1	13,3	5,16	0,648	0,251	7,73	0,363	0,377	0,0177
U	237,05	19,1	487,5	476,4	23,6	23,1	6,72	0,135	0,326	0,0066
U	238,05	19,1	11,63	2,71	0,562	0,131	7,10	0,123	0,343	0,0059
Прир. U	238,03	19,1	16,49	3,39	0,797	0,1637	7,01	0,120	0,343	0,0058
Прир. W	183,85	19,3	23,08	18,05	1,459	1,141	6,95	0,057	0,439	0,0036
CH ₂	14	0,94			2,68	0,027			0,449	0,0000
H ₂ O	18	1,0			2,18	0,022			0,560	0,0000
D ₂ O	20	1,1			0,410	0,000			0,420	0,0000
Среднее продуктов деления:										
²³⁵ U	117		4496	4486			7,43	0,00036		
²³⁹ Pu	119		2087	2086			7,48	0,00093		

* Нули означают нулевое значение для нескольких показанных цифр.

Например, при анализе плутония замедление в объеме образца дает нежелательный эффект. Высокоэнергетические нейтроны способны глубже проникать в образец и имеют меньшие сечения деления, поэтому размножение для высокоэнергетических нейтронов меньше, чем для низкоэнергетических. С другой стороны, замедление нейтронов в рабочем объеме детектора повышает эффективность регистрации для таких детекторов, как пропорциональные газонаполненные

счетчики с ^3He -наполнением. Размещая водородосодержащее вещество (например, полиэтилен) вокруг детекторов, можно регистрировать нейтроны более эффективно. Также необходим фильтр, пропускающий высокоэнергетические нейтроны в объем детектора, в котором они замедлятся. В то же время такой фильтр не должен позволить замедленным нейтронам снова вернуться в объем образца, в котором они могли бы вызвать дополнительные деления. Очень эффективен для этой цели слой вещества с большим сечением поглощения медленных нейтронов (такого как кадмий, см. рис. 12.5), помещенный между рабочей полостью детектора и объемом замедлителя.

Для сравнения замедляющих свойств различных веществ используется замедляющая способность. Если одно вещество имеет большую замедляющую способность, чем другое, то потребуется меньшее количество этого вещества для получения той же степени замедления. При этом важны два фактора: вероятность взаимодействия посредством рассеяния (вероятность рассеяния) и среднее изменение кинетической энергии нейтрона после такого взаимодействия. Для того чтобы вещество было эффективным замедлителем, необходимо, чтобы вероятность взаимодействия и средние энергетические потери были бы высокими. Замедляющая способность определяется как $\xi\Sigma_s$, где Σ_s — макроскопическое сечение взаимодействия, а ξ — средний логарифмический декремент энергии (или потеря энергии в одном акте рассеяния). Этот декремент равен $\ln(E_{\text{до}}) - \ln(E_{\text{после}})$, где $E_{\text{до}}$, $E_{\text{после}}$ — энергии до и после рассеяния, соответственно. Когда в веществе с массовым числом A преобладает процесс упругого рассеяния, средний логарифмический декремент энергии равен

$$\xi = 1 - \frac{(A-1)^2}{2A} \ln \frac{(A+1)}{(A-1)}. \quad (12.9)$$

Для $A > 2\xi$ средний логарифмический декремент можно аппроксимировать выражением $2/(A + 0,67)$ [3]. Замедляющая способность вещества со сложным химическим составом определяется как

$$\xi N_s = \frac{\rho N_a}{M} (n_1 \sigma_1 \xi_1 + n_2 \sigma_2 \xi_2 + n_3 \sigma_3 \xi_3 + \dots), \quad (12.10)$$

где ρ — плотность соединения;

M — молекулярная масса соединения;

N_a — число Авогадро;

n_i — количество атомов i -го элемента в одной молекуле;

σ_i — макроскопическое сечение рассеяния для i -го элемента;

ξ_i — логарифмический декремент энергии для i -го элемента.

Тем не менее материал с большой замедляющей способностью может оказаться бесполезным в качестве замедлителя, если он имеет большое сечение поглощения. Такой замедлитель будет эффективно уменьшать скорость непоглощенных нейтронов, однако доля оставшихся нейтронов может оказаться слишком незначительной для практического использования. Более полной мерой замедляющих свойств материалов является коэффициент замедления $\xi\Sigma_s/\Sigma_a$. Если необходимо, чтобы коэффициент замедления был большим, то имеется ввиду не только

хорошая замедляющая способность вещества, но и низкая вероятность поглощения. Для вещества со сложным элементным составом коэффициент замедления определяется уравнением (12.10), если каждый символ σ_i заменить отношением σ_s/σ_a для i -го элемента.

В табл. 12.4 даны значения замедляющей способности и коэффициента замедления некоторых распространенных материалов-замедлителей в диапазоне энергий от 1 эВ до 100 кэВ [4]. Обычная вода имеет более высокую замедляющую способность, чем тяжелая вода, потому что массовое число водорода вдвое меньше, чем у дейтерия. Но ядра водорода (протоны) поглощают нейтроны и образуют ядра дейтерия более эффективно, чем ядра дейтерия поглощают нейтроны и образуют ядра трития. Вследствие этой разницы в сечениях поглощения тяжелая вода имеет существенно более предпочтительный коэффициент замедления. Однако из соображений доступности и низкой стоимости часто предпочтение отдается обычной воде. Твердые вещества, приведенные в таблице, имеют более высокие коэффициенты замедления, чем обыкновенная вода, и они могут иметь преимущества при их изготовлении. Обычно в качестве замедлителя выбирается полиэтилен, благодаря высоким значениям его замедляющей способности и коэффициента замедления.

Таблица 12.4 – Замедляющая способность и коэффициент замедления различных материалов [4]

Замедлитель	Замедляющая способность (от 1 эВ до 100 кэВ)	Коэффициент замедления (аппроксимация)
Вода	1,28	58
Тяжелая вода	0,18	21 000
Гелий (при нормальных условиях)	0,00001	45
Бериллий	0,16	130
Графит	0,064	200
Полиэтилен (СН ₂)	3,26	122

12.5 ЭФФЕКТЫ РАЗМНОЖЕНИЯ В МАССИВНЫХ ОБРАЗЦАХ ВЕЩЕСТВА

Эффект размножения наблюдается, если при нейтронном взаимодействии образуется больше одного нейтрона. В результате такого взаимодействия число нейтронов в веществе возрастает. Наиболее известное событие — деление ядер, хотя другие взаимодействия с поглощением нейтрона также могут давать заметный вклад в процесс размножения нейтронов, например, реакция $(n,2n)$.

Из всех нейтронов, присутствующих в веществе в данный момент времени, часть их в конечном итоге покинет его, а другие поглотятся. Дополнительные нейтроны могут образоваться в веществе как продукты реакций с поглощением нейтронов. По определению, умножение M представляет собой отношение полного числа нейтронов в веществе к числу первоначальных нейтронов. Если в образце первоначально было 100 нейтронов и обнаружено, что в результате событий с размножением образовано дополнительно 59 нейтронов, то умножение равно 1,59. Только часть первоначального поколения из 100 нейтронов дает дополнительные нейтроны в событиях с размножением, другие нейтроны покидают образец или поглощаются в нем вследствие других типов взаимодействий. Некоторая часть второго поколения вызовет следующее поколение и т.д. Число нейтронов, остающихся в образце, в каждом новом поколении постоянно уменьшается до нуля, однако в целом полное число нейтронов, образованных в результате всех событий с размножением, равно 59.

Соответствующее наиболее часто используемое понятие называется коэффициентом размножения. Это понятие связывает числа нейтронов в последовательных поколениях. Есть два типа коэффициентов размножения, которые относятся к различным физическим размерам рассматриваемого материала.

Если материал имеет бесконечные размеры, то коэффициент размножения обозначается символом k_{∞} и определяется как отношение числа нейтронов одного поколения к числу нейтронов в предыдущем поколении. Ввиду бесконечных размеров материала все нейтроны любого поколения поглощаются. Таким образом, для материала с бесконечными размерами коэффициент размножения k_{∞} равен также отношению числа нейтронов, образовавшихся в одном поколении, к числу нейтронов, поглотившихся в предыдущем поколении.

Если материал имеет конечные размеры, то некоторые нейтроны одного поколения могут выйти через поверхность из объема, занимаемого веществом, и не поглотиться в нем. Такие нейтроны называются нейтронами "утечки". Коэффициент размножения для этой более реалистической ситуации называется эффективным коэффициентом размножения $k_{эфф}$. Этот коэффициент определяется как отношение числа нейтронов одного поколения к числу нейтронов, которые были либо поглощены, либо покинули образец (нейтроны утечки) в предыдущем поколении. Коэффициент размножения $k_{эфф}$ более применим для целей контроля ядерных материалов, так как соответствующие инструментальные средства часто имеют малые размеры, на которые накладываются ограничения по габаритам и массе.

В качестве примера $k_{эфф}$ и его взаимосвязи с умножением M , рассмотрим случай, описанный ранее. Первоначальные 100 нейтронов будут составлять первое поколение. Если эти нейтроны образуют в результате реакций 37 нейтронов, то эти 37 нейтронов составят следующее поколение. Таким образом, эффективный коэффициент размножения в этом случае равен 0,37. Если коэффициент размножения $k_{эфф}$ меньше единицы, то число нейтронов в последующих поколениях уменьшается, последовательно стремясь к нулю. Как показано в табл. 12.5, для того чтобы число первоначальных 100 нейтронов уменьшилось до приблизительно нулевого значения, потребуется 7 поколений.

Число нейтронов в одном поколении можно вычислить, умножив число нейтронов предыдущего поколения на коэффициент размножения $k_{эфф}$, который в рассматриваемом примере равен 0,37. Этот процесс носит вероятностный харак-

тер, и действительное число нейтронов любого поколения точно определить невозможно. Однако при большом числе нейтронов отношение количеств нейтронов, которые находятся в последовательных поколениях, приблизительно постоянно.

Таблица 12.5 – Пример спадающей популяции нейтронов

Поколение	Среднее число нейтронов при $k_{эфф} = 0,37$
1	100
2	37
3	14
4	5
5	2
6	1
7	0
	159

Величину умножения M легко связать с коэффициентом размножения $k_{эфф}$, если $k_{эфф}$ меньше единицы. Складывая все количества нейтронов, образующихся в каждом поколении, можно найти сумму членов геометрической прогрессии:

$$M = 1 / (1 - k_{эфф}), \quad k_{эфф} < 1. \quad (12.11)$$

Умножению 1,59 в табл. 12.5, соответствует эффективный коэффициент размножения 0,37, показывающий, что число нейтронов в последующих поколениях уменьшается.

При приближении коэффициента размножения $k_{эфф}$ к единице, значение величины умножения M неограниченно возрастает, как показано на рис. 12.9. Когда

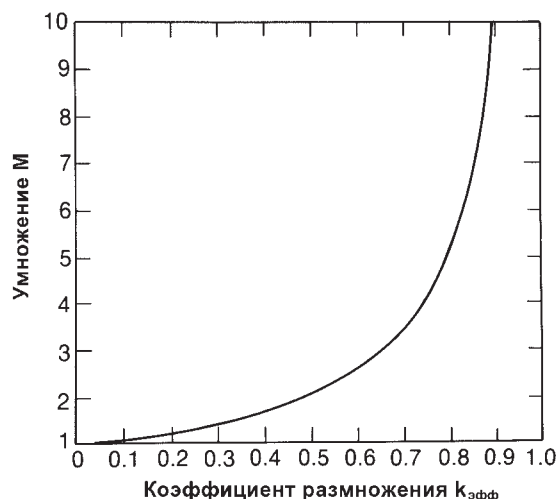


Рис. 12.9. Соотношение между умножением M и эффективным коэффициентом размножения $k_{эфф}$. Включены только подкритические значения ($k_{эфф} < 1$)

$k_{эфф} = 1$, формула показывает, что число образуемых нейтронов не имеет предельного значения (стремится к бесконечности). Фактически, число ядер, которые могут образовать нейтроны, имеет предельное значение, поэтому число образующихся нейтронов является величиной конечной, но чрезвычайно большой. Говорят, что критичность достигается при коэффициенте размножения $k_{эфф} = 1$, если коэффициент размножения $k_{эфф}$ больше единицы, то образец надкритический, если коэффициент размножения $k_{эфф}$ меньше единицы, то образец подкритический.

12.6 ЗАЩИТА ОТ НЕЙТРОНОВ

Для защиты персонала от биологического воздействия нейтронов и уменьшения скорости счета детектора от внешнего нейтронного фона часто необходима защита от нейтронов. Выбор и размещение защитных материалов зависят от конкретной ситуации. Некоторые общие принципы можно получить, исходя из нейтронных взаимодействий с веществом, которые описаны в этой главе.

Тепловые нейтроны с кинетической энергией 0,025 эВ очень эффективно поглощаются тонким слоем бора или кадмия, вследствие больших сечений взаимодействия, показанных на рис. 12.4 и 12.5. Борная защита часто применяется в форме карбида бора (B_4C) или насыщенных бором растворов. Обычно используемый материал — бораль или боракс (смесь карбида бора и алюминия), который доступен в виде тонкостенных пластин различной толщины. Недостаток кадмия заключается в испускании высокоэнергетических гамма-квантов вследствие реакции радиационного захвата, в результате чего может понадобиться дополнительная защита от гамма-излучения. Сравнение рис. 12.4 и 12.5 показывает, что кадмий более эффективно, чем бор, поглощает тепловые нейтроны, тогда как бор более эффективно поглощает надтепловые нейтроны (область энергии нейтронов от 0,1 до 10 эВ).

Защита от высокоэнергетических нейтронов трудно выполнима, так как сечения поглощения существенно ниже. Поэтому сначала необходимо замедлить высокоэнергетические нейтроны посредством упругих и неупругих рассеяний. Неупругое рассеяние и поглощение могут сопровождаться образованием потенциально опасных гамма-квантов, например, при захвате нейтрона ядром водорода испускается гамма-квант с энергией 2,224 МэВ. Поэтому эффективная защита от излучения состоит из комбинации следующих материалов: водородосодержащих веществ или других материалов с низкими значениями A для замедления нейтронов, поглотителей тепловых нейтронов, материалов с большими значениями Z для поглощения гамма-квантов. Примерами материалов комбинированной защиты являются полиэтилен и свинец, бетон, содержащий железный лом, и более экзотические материалы, такие как гидрид лития.

В целях безопасной работы с небольшими образцами делящихся веществ и слабыми источниками нейтронов можно ограничиться защитой в несколько сантиметров полиэтилена. Защитные свойства полиэтилена представлены на рис. 12.10, на котором показана мощность дозы излучения на поверхности сферы из полиэтилена при размещении в центре источника с изотопом ^{252}Cf . Этот источник испускает высокоэнергетические нейтроны, спектр которых подобен спектрам спонтанного деления большинства изотопов урана и плутония. Кроме того,

образуются гамма-кванты в реакциях деления и дополнительные гамма-кванты с энергией 2,224 МэВ в реакции радиационного захвата нейтрона в полиэтилене. Вклад нейтронов в суммарную дозу преобладает для сфер с радиусами меньше 22 см. Гамма-кванты, генерируемые источниками, дают меньший вклад в дозу. Захватное гамма-излучение дает еще меньший вклад в дозу. Увеличивая радиус с 5 до 12 см или с 20 до 37 см, можно уменьшить суммарную мощность дозы в десять раз. Практический метод уменьшения суммарной мощности дозы состоит в том, что слой полиэтилена толщиной в 10 см уменьшает мощность дозы нейтронов приблизительно в 10 раз.

Иногда можно получить более эффективные защитные экраны, добавляя к полиэтилену бор, литий или свинец. Добавки бора или лития приводят к меньшей дозе от гамма-квантов, образованных в реакциях радиационного захвата, чем в случае только полиэтиленовой защиты. Свинец сильно ослабляет интенсивность гамма-излучения источников и гамма-излучения, образованного в результате реакций радиационного захвата, так как свинец — тяжелый элемент. Однако, поскольку нейтроны дают большую часть вклада в дозу для сфер с радиусом, меньшим 22 см, добавки этих веществ малоэффективны, если толщина защиты меньше 22 см. На рис. 12.11 показано влияние на суммарную дозу добавок других веществ к полиэтилену. Как видно, эти добавки играют существенную роль только для защиты с толщиной больше 30 см. Полиэтилен, содержащий добавки бора, лития или свинца, значительно дороже чистого полиэтилена, поэтому при разработке защиты следует принимать во внимание ее стоимость.

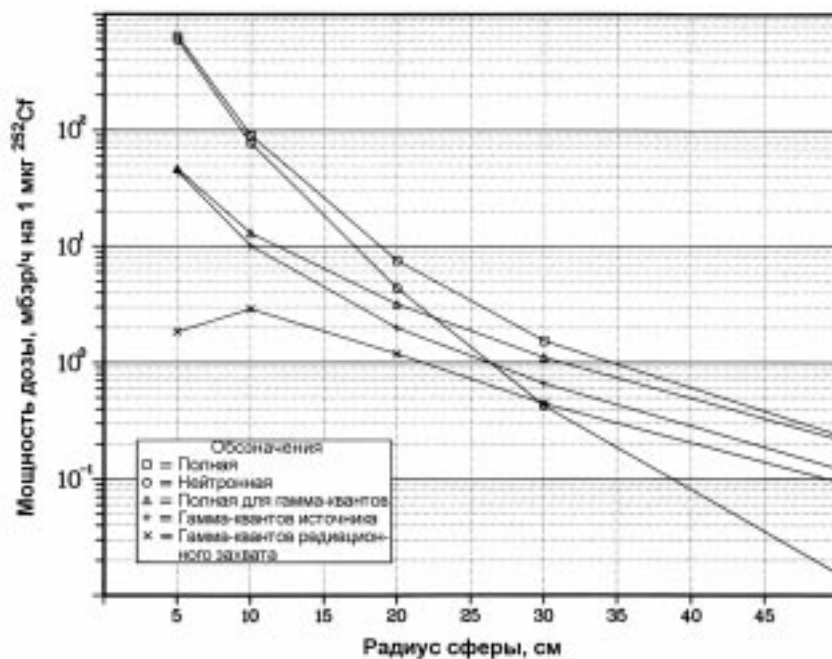


Рис. 12.10. Мощности дозы на поверхности полиэтиленовой сферы для точечного источника нейтронов на основе изотопа ²⁵²Cf. (По данным Г. Е. Бослера, Лос-Аламос)

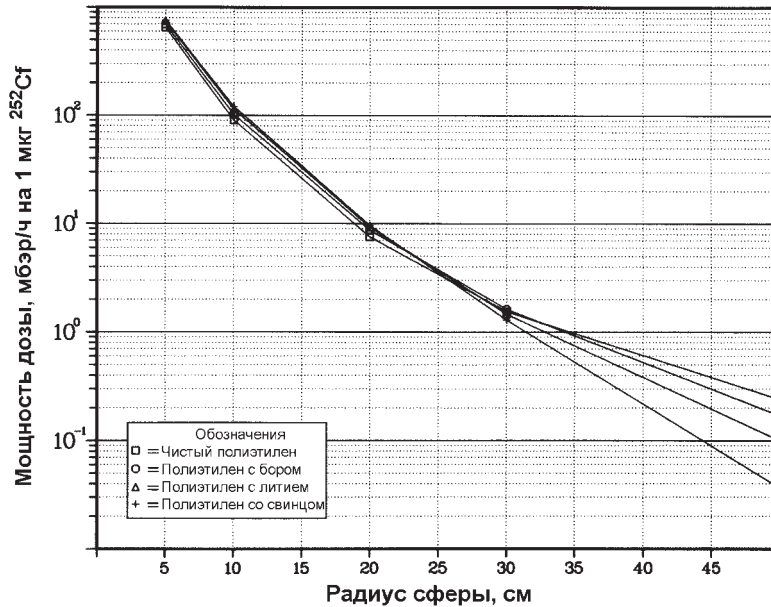


Рис. 12.11. Полная мощность дозы на поверхности сферы из различных материалов для точечного источника нейтронов на основе изотопа ²⁵²Cf. (По данным Г.Е. Бослера, Лос-Аламос)

12.7 МЕТОДЫ РАСЧЕТА ПЕРЕНОСА НЕЙТРОНОВ

Историю нейтрона в веществе трудно проследить из-за большого числа возможных процессов взаимодействий нейтрона. Эта задача еще более усложняется, когда состав материала на пути нейтрона часто меняется, что обычно имеет место в приборах контроля. Методы расчета переноса нейтронов и гамма-квантов в таких сложных условиях важны для проектирования приборов, интерпретации результатов измерений и разработки конфигурации защиты. Два метода расчета переноса нейтронов в веществе кратко представлены в разделах 12.7.1 и 12.7.2.

12.7.1 Метод Монте-Карло

Вероятность взаимодействия нейтрона является важной характеристикой для описания переноса нейтрона в веществе. Вместо того, чтобы предсказывать поведение отдельного нейтрона, можно использовать программы для прогнозирования того, какая доля из большого числа нейтронов поведет себя определенным, интересующим исследователя, образом. Метод вычисления, который основан на розыгрыше вероятностей взаимодействия нейтронов, упрощенно говоря, с помощью рулетки или игральные костей (фактически, генерации случайных чисел в компьютере), называется методом Монте-Карло. Отклик анализируемой системы можно часто вычислить на основе моделирования переноса многих нейтронов, рассмотренных по отдельности, несмотря на рассмотрение маловероят-

ных и редких историй, которые могут давать аномальное отклонение от среднего поведения.

Метод Монте-Карло позволяет построить подробный трехмерный геометрический блок для имитации физического объекта средствами математического моделирования. Нейтрон может быть запущен из определенной заданной точки в выбранном направлении с заданной энергией. Длина пробега нейтрона выбирается, исходя из розыгрыша, случайным образом в соответствии со средней длиной свободного пробега нейтрона в рассматриваемых материалах. В конце каждого шага вычисляемого отрезка пути нейтрона на основе данных о сечении взаимодействия разыгрывается определенный тип взаимодействия нейтрона с заданной кинетической энергией в веществе. После выбора типа взаимодействия моделируются все последующие события и результаты такого взаимодействия. В конце концов достигается момент, когда нейтрон полностью теряет свою энергию и розыгрыш его истории заканчивается. Это может произойти, когда нейтрон вылетает из рассматриваемого геометрического объема или замедляется до очень низкой кинетической энергии. Нейтрон может поглотиться с последующим испусканием гамма-кванта, не представляющего интерес, или может вызвать размножение нейтронов. В последнем случае прослеживаются истории всех вновь образованных нейтронов. В принципе, нейтронное моделирование представляет собой историю, которая могла бы на самом деле произойти с реальным нейтроном.

Повторяя эту процедуру для многих тысяч нейтронов и накапливая информацию о том, сколько нейтронов вошло в объем детектора, сколько произошло делений, сколько вышло нейтронов через защиту, или определяя другие интересные процессы, постепенно вычисляются разные физические характеристики. Существует множество специальных методов получения хороших оценок средних значений с наименьшим числом нейтронов, но есть случаи, когда даже самый быстрый компьютер не в состоянии разыграть достаточное количество историй из-за ограничений по времени. Тем не менее, метод Монте-Карло существенно помогает при проектировании, благодаря моделированию реальной геометрии рассматриваемой задачи, реального переноса нейтронов и их взаимодействия с веществом. Примеры результатов расчетов, полученных методом Монте-Карло, которые можно применить для проектирования защиты и счетчиков совпадений, описанных в главах 14 и 17, представлены на рис. 12.10 и 12.11.

12.7.2 Метод дискретных ординат

Существуют дифференциальные уравнения для решения задачи переноса нейтронов, которые описывают точное поведение нейтронов в веществе в аналитическом виде. Однако для сложных систем они дают только приближенные численные решения. К числу подобных процедур получения численных решений относятся методы дискретных ординат (или дискретных направлений потока излучения).

Имеется несколько важных отличий метода дискретных ординат от метода Монте-Карло. Как правило, в расчетах методом дискретных ординат используются только одномерная или двухмерная геометрии. При этом считается, что нейтроны локализованы внутри конечного объема, а не перемещаются свободно в пространстве. Например, в случае метода двухмерных дискретных ординат считается, что материал поверхности разбивается пространственной сеткой на отдель-

ные элементы, а перенос нейтронов производится только между узлами этой сетки. Кроме того, энергия нейтрона в любой момент должна выбираться из фиксированного набора значений, в отличие от непрерывного изменения энергии нейтрона в методе Монте-Карло.

Несмотря на эти недостатки, метод дискретных ординат может давать во многих случаях полезные результаты. Для задач, в которых рассматриваются большие объемы и количества материалов (например, активные зоны реакторов), расчет методом Монте-Карло может быть слишком сложным и длительным. В этих случаях вполне приемлем метод дискретных ординат.

ЛИТЕРАТУРА

1. D.I. Garber, and R.R. Kinsey, "Neutron Cross Sections, Vol. II, Curves," Brookhaven National Laboratory report BNL 325 (1976).
2. Evaluated Nuclear Data File ENDF/B-V (поддерживается и может быть получен из Национального Центра Ядерных Данных Брукхейвенской Национальной Лаборатории).
3. J.R. Lamarsh, *Introduction to Nuclear Reactor Theory* (Addison-Wesley, Reading, Massachusetts, 1966).
4. S. Glasstone and A. Sesonske, *Nuclear Reactor Engineering* (D. Van Nostrand Co., Inc., Princeton, New Jersey, 1967).

Глава 13

Детекторы нейтронов

*Т. В. Крейн и М. П. Бейкер
(Переводчик Н. В. Бабкина)*

13.1 МЕХАНИЗМЫ РЕГИСТРАЦИИ НЕЙТРОНОВ

Механизмы регистрации нейтронов в веществе основаны на косвенных методах. Нейтроны, как видно из их названия, нейтральны. Они не вступают, как гамма-кванты, в непосредственное взаимодействие с электронами вещества. Процесс регистрации нейтронов начинается тогда, когда при взаимодействии с ядрами нейтроны инициируют образование одной или нескольких заряженных частиц. Электрические сигналы, образованные этими заряженными частицами, могут затем обрабатываться детектирующей системой.

Существуют два основных типа взаимодействия нейтронов с веществом. Во-первых, может иметь место рассеяние нейтрона на ядре с передачей последней части кинетической энергии нейтрона. Если при этом передается достаточное количество энергии, ядро отдачи ионизирует вещество вокруг точки взаимодействия. Данный механизм эффективен лишь при взаимодействии нейтронов с легкими ядрами. Для практического использования в детекторах достаточно легкими являются только ядра водорода и гелия. Во-вторых, нейтрон может вызвать ядерную реакцию. Продукты этих реакций, такие как протоны, альфа-частицы, гамма-кванты и осколки деления, могут регистрироваться детектором. Условие протекания некоторых реакций является наличие минимальной энергии нейтронов (энергетического порога), но большинство реакций могут происходить и на тепловых нейтронах. Детекторы, регистрирующие тепловые нейтроны, как правило, окружены материалом-замедлителем нейтронов, что позволяет добиться максимальной эффективности регистрации.

Детекторы, использующие либо механизм отдачи, либо механизм ядерной реакции, могут иметь твердое, жидкое или газообразное наполнение. Хотя выбор реакций и ограничен, детектирующая среда может быть достаточно разнообразна, что создает множество вариантов. В настоящей главе описываются пропорциональные счетчики, сцинтилляторы, камеры деления, камеры с покрытием из ^{10}B и другие типы нейтронных детекторов. Газонаполненные детекторы рассматриваются в разделах 13.4.1 — 13.4.4, пластмассовые и жидкие сцинтилляторы — в разделе 13.5, другие типы детекторов — в разделе 13.6.

Информация об энергии нейтронов, получаемая с помощью детектирующих систем, как правило, скудна из-за ограниченного числа возможных нейтронных реакций. Счетчики на ядрах отдачи регистрируют только первый акт взаимодействия. При этом энергия нейтрона, как правило, полностью не поглощается в детекторе; единственная информация об энергии, которая может быть получена, это информация о том, инициировано ли это взаимодействие нейтроном высокой или низкой энергии. В счетчиках на ядерных реакциях используется преимуще-

ство более высокой вероятности реакции при низких энергиях нейтронов путем предварительного замедления нейтронов. Но информация о начальной энергии нейтронов до замедления при этом теряется. Энергия, регистрируемая детектором, — это энергия реакции (и, возможно, остаточная начальная энергия нейтронов). В целом, таким образом нейтронные детекторы позволяют получить информацию только о количестве зарегистрированных нейтронов, но не об их энергии. Данные об энергетическом диапазоне зарегистрированных нейтронов обычно могут быть получены из сведений о типе детектора и окружающих материалах. Если требуются данные по энергетическому спектру нейтронов, они могут быть иногда получены косвенными методами, представленными в разделе 13.7.

13.2 ОСНОВНЫЕ СВОЙСТВА ГАЗОНАПОЛНЕННЫХ ДЕТЕКТОРОВ

Газонаполненные детекторы были одними из первых приборов, использовавшихся для регистрации излучений. Они могут применяться для регистрации либо тепловых нейтронов за счет ядерных реакций, либо быстрых нейтронов посредством ядер отдачи. После того, как произошло начальное взаимодействие, регистрация нейтронов осуществляется с помощью однотипной вторичной аппаратуры, в которой для подключения различных детекторов предусмотрено регулирование напряжения высоковольтного питания и усиления. На рис. 13.1 представлена типовая блок-схема газонаполненного детектора для регистрации нейтронов. На рис. 13.2 показаны некоторые наиболее распространенные детекторы.

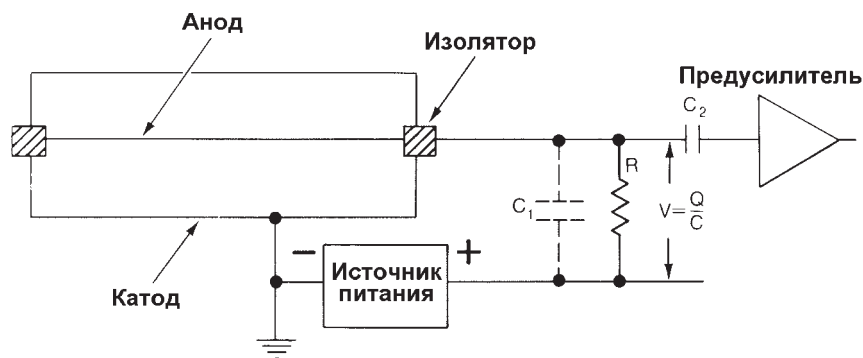


Рис. 13.1. Типовая блок-схема включения газонаполненных детекторов нейтронов

По внешнему виду газонаполненный детектор представляет собой металлический цилиндр с электрическим разъемом на одном конце (или на обоих концах при проведении позиционно чувствительных измерений). Выбор разъема зависит от характера предполагаемого использования детектора; это может быть как простой проволочный вывод, так и другие широко используемые типы разъемов. Стенки корпуса детектора имеют толщину 0,5 мм и изготовлены из нержавеющей стали или алюминия. Характеристики обоих материалов вполне удовлетворительны, наблюдается лишь незначительное различие в пропускании нейтронов и кон-

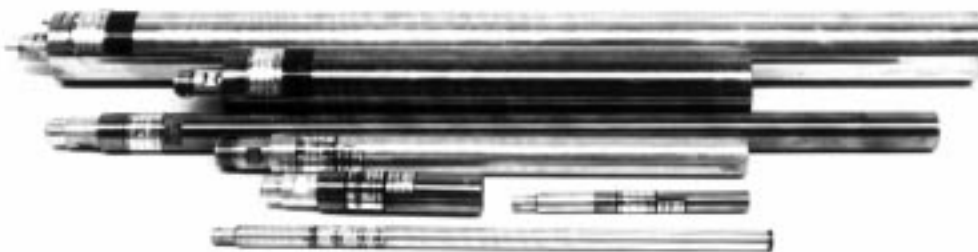


Рис. 13.2. Детекторы нейтронов различных размеров, наполненные BF_3 и ${}^3\text{He}$

струкционной прочности. Стенки корпуса из нержавеющей стали поглощают около 3 % нейтронов, а стенки корпуса из алюминия — около 0,5 %. По этой причине предпочтение обычно отдается алюминиевым трубкам из-за более высокой эффективности регистрации нейтронов. Вместе с тем, в ряде случаев стальные трубки имеют небольшое преимущество перед алюминиевыми трубками: они не требуют чрезмерной осторожности при сборке, соединительные нити менее подвержены коррозионному воздействию, может быть понижен уровень примесей. При очень низкой скорости счета наблюдался фон 1 имп./мин, что было отнесено за счет примеси радия в алюминии [1].

Центральная нить, показанная на рис. 13.1, имеет толщину 0,03 мм и изготовлена из позолоченного вольфрама. Вольфрам обеспечивает прочность тонкой нити на растяжение, а покрытие из золота улучшает электропроводность. Положение нити фиксируется керамическими изоляторами.

Иногда внутренняя поверхность корпуса детектора покрывается активированным углем. Такое покрытие используется для трубок, наполненных трифторидом бора (BF_3) или ${}^3\text{He}$, при измерениях больших потоков нейтронов. Активированный уголь позволяет абсорбировать электроотрицательные ионы газа, которые образуются под воздействием нейтронов. Например, в детекторах, наполненных BF_3 , при каждом захвате нейтрона атомом бора образуется три атома фтора. При последующих захватах нейтронов атомы фтора соединяются с образующимися электронами. Сначала данный процесс снижает амплитуду электрического импульса, а в конечном счете полностью прекращает образование выходного импульса [2]. Дополнительные данные о конструкции газонаполненных детекторов можно найти в работах [3 и 4].

Как показано в разделе 13.1, регистрация нейтронов предполагает передачу части или всей энергии нейтронов заряженным частицам. Затем заряженная частица ионизирует и возбуждает атомы вдоль своей траектории до тех пор, пока не будет исчерпана ее энергия. Для создания пары ионов в газонаполненном детекторе требуется около 30 эВ. Максимальное число пар ионов, которое может быть образовано, равно $E/30$ эВ, где E — кинетическая энергия заряженной частицы (или заряженных частиц) в эВ. Например, при передаче энергии 765 кэВ образуются положительные и отрицательные заряды, в сумме составляющие около 8×10^{15} Кл.

Если на трубку подается незначительное напряжение или оно не подается совсем, то большинство ионов рекомбинируют, и электрический сигнал на выходе не образуется. При приложении к центральной нити (аноду) положительного потенциала электроны начинают двигаться в направлении анода, а положительно заряженные ионы — к стенке корпуса (катода). При этом на выходе детектора об-

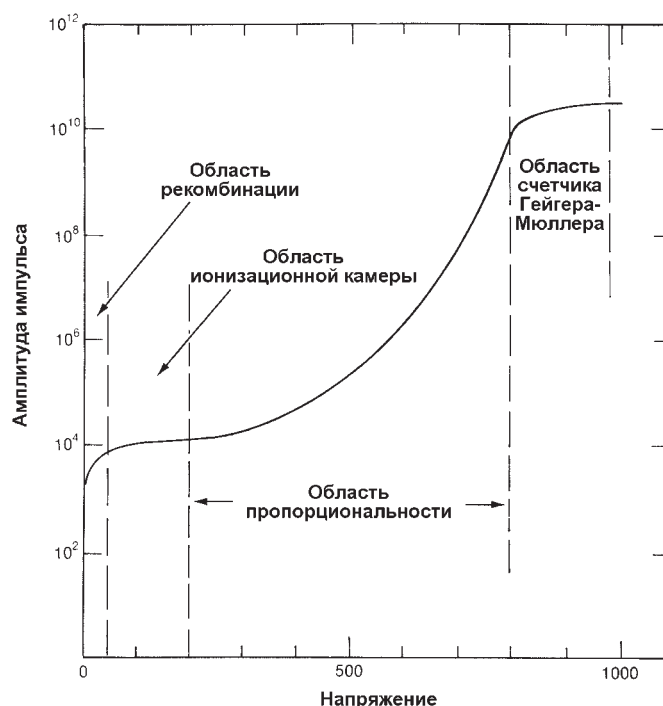


Рис. 13.3. Зависимость амплитуды импульсов от напряжения источника питания газонаполненных счетчиков с разделением на области рекомбинации, ионизации, пропорциональности и области счетчика Гейгера-Мюллера

разуется электрический сигнал, амплитуда которого зависит от величины прикладываемого напряжения, геометрии счетчика и газа-наполнителя. Указанные параметры определяют, работает ли детектор в ионизационной области, пропорциональной области или области счетчика Гейгера-Мюллера. Эти рабочие области показаны на рис. 13.3.

В ионизационной области приложенное напряжение достаточно для сбора почти всех электронов до того, как они рекомбинируют. В этой точке достигается плато счетной характеристики детектора, и дальнейшее незначительное увеличение напряжения не приводит к образованию дополнительных электронов. Детекторы, работающие в данной области, называются ионизационными камерами. Собранный заряд пропорционален энергии, переданной газу, и не зависит от величины прикладываемого напряжения.

Область работы детектора, следующая за ионизационной областью, называется областью пропорциональности. Напряженность электрического поля здесь достаточно высока для того, чтобы первичные электроны получили необходимую энергию для ионизации молекул газа и создания вторичной ионизации. При дальнейшем увеличении напряженности электрического поля вторичные электроны также могут ионизировать молекулы газа. С увеличением напряженности электрического поля данный процесс быстро развивается, при этом значительно увеличивается число ионов, образованных в первоначальном акте. Этот процесс кумулятивного усиления называется лавинной ионизацией. Если из одной пер-

воначальной пары ион-электрон образовалось A таких пар, то коэффициент газового усиления равен A . Коэффициент газового усиления будет равен единице для ионизационной камеры, когда не образуются вторичных ионов, и колебаться в пределах от 10^3 до 10^5 для пропорциональных счетчиков хорошей конструкции. Обратите внимание, что в области пропорциональности собранный заряд также прямо пропорционален энергии, переданной газу.

Для обеспечения процесса газового усиления электрон должен получить достаточную энергию на расстоянии в одну или несколько средних длин свободного пробега, чтобы ионизировать нейтральную молекулу. Средняя длина свободного пробега — это среднее расстояние, которое проходит электрон в газовой среде пропорционального счетчика между столкновениями, равное примерно 1–2 мкм. Для получения коэффициента газового усиления 10^6 требуется менее 20 средних длин свободного пробега, из чего можно заключить, что рассматриваемый процесс протекает лишь в ограниченной области вокруг нити. В остальном объеме электроны дрейфуют в сторону анода. Поскольку процесс газового усиления предполагает наличие очень сильного электрического поля, преимуществом цилиндрической конструкции детектора и является как раз сильное электрическое поле вблизи внутренней нити. Полное усиление пропорционально не пройденному расстоянию, а разности потенциалов электрического поля.

В то время, как электроны дрейфуют в направлении анода, положительные ионы дрейфуют в направлении катода. В пропорциональном счетчике скорость дрейфа электронов приблизительно на три порядка выше скорости дрейфа положительных ионов. Поскольку лавина формируется вблизи нити-анода, электроны с большей скоростью дрейфа собираются в течение крайне короткого отрезка времени (10^{-8} с); дрейфующие с меньшей скоростью положительные ионы собираются на катоде за большее время. Поэтому время нарастания фронта наблюдаемых импульсов имеет две составляющие: быструю, обусловленную движением электронов, и последующую медленную, обусловленную движением положительных ионов. Кроме того, поскольку положительные ионы образуются первоначально вблизи анода и должны затем дрейфовать через все пространство между анодом и катодом, то амплитуда импульса в значительной степени определяется дрейфом положительных ионов. Импульс достигает полной амплитуды только тогда, когда полностью собраны все положительные ионы. При использовании типового пропорционального счетчика время собирания заряда может достигать 200 мкс. Путем дифференцирования можно получить гораздо более короткие импульсы без существенной потери амплитуды, обеспечивая таким образом высокую скорость счета. Можно рассмотреть изменение временного интервала, обусловленное изменением времени дрейфа первичных электронов из области взаимодействия до нити-анода. Оно зависит от напряжения на трубке и ее диаметра; для некоторых типовых газонаполненных детекторов был установлен следующий временной интервал: 1,1 мкс (CH_4), 2,5 мкс (^3He) и 17 мкс (^4He) [5].

По мере дальнейшего увеличения напряжения пропорциональность между первичным зарядом и выходным сигналом постепенно теряется. Эта потеря обусловлена прежде всего эффектом насыщения у нити-анода. При достижении первичными ионами областей высокой напряженности электрического поля около нити начинает развиваться и быстро достигает максимального значения лавинный процесс, поскольку вторичные электроны создают дополнительные лавины по оси вдоль нити. В отличие от пропорциональной области, где лавина локализо-

вана, в данном случае лавины распространяются по всей длине нити-анода, и процесс завершается только тогда, когда напряженность электрического поля значительно падает, что препятствует ускорению вторичных электронов. При слабой первичной ионизации возможны коэффициенты усиления до 10^{10} . Детекторы, работающие в данной области, называются счетчиками Гейгера-Мюллера (или просто счетчиками Гейгера). Счетчики Гейгера имеют простую электронику и широко используются в сложных полевых условиях. Поскольку для них характерно быстрое насыщение, счетчики Гейгера не могут применяться при высоких скоростях счета, но это ограничение не мешает их использованию в качестве прибора измерений излучений низкой интенсивности.

Нейтронные счетчики, работающие в режиме ионизационной камеры или пропорционального счетчика, могут создавать на выходе или усредненный ток, или отдельные импульсы, что зависит от используемой электроники. Измерение только усредненного выходного тока реализуется в радиационных дозиметрах и мониторах мощности реактора. При анализе ядерного материала нейтронные счетчики обычно используются в импульсном режиме, что позволяет регистрировать отдельные нейтроны.

В зависимости от области применения рассматриваемые детекторы обычно заполняются ^3He , ^4He , VF_3 или CH_4 под давлением от 1 до 20 атм. Для улучшения рабочих характеристик детектора часто добавляются другие газы. Например, для сокращения длины пробега продуктов реакции может использоваться тяжелый газ, такой как аргон, при этом большая часть кинетической энергии продуктов реакции передается газу, и таким образом улучшается амплитудное разрешение выходных импульсов. Добавление тяжелого газа также ускоряет собирание зарядов, но имеет и негативное последствие — повышает чувствительность детектора к гамма-излучению [6].

В наполнитель пропорционального счетчика может также добавляться многоатомный газ, имеющий эффект газа-гасителя. Вращательные степени свободы, характерные для молекул многоатомного газа, ограничивают количество энергии, получаемой электронами при прохождении разности потенциалов, позволяя таким образом гасить и сокращать лавинный процесс и уменьшать наложение импульсов. Такие газы, как VF_3 и CH_4 , сами являются многоатомными и не требуют добавления газа-гасителя. Трубки, наполненные ^3He и ^4He , часто содержат в качестве добавки незначительное количество CH_4 или CO_2 . Поскольку VF_3 и CH_4 являются многоатомными газами, наполненные ими детекторы требуют более высокого рабочего напряжения. Кроме того, относительно большое количество многоатомного газа ограничивает прирост энергии, получаемой между столкновениями, поэтому обычно давление газа в этих детекторах не может быть таким высоким, как давление в детекторах, наполненных одноатомными газами.

13.3 ЧУВСТВИТЕЛЬНОСТЬ ДЕТЕКТОРОВ НЕЙТРОНОВ К ГАММА-ИЗЛУЧЕНИЮ

Детекторы нейтронов, рассмотренные в данной главе, в определенной степени чувствительны как к нейтронному, так и к гамма-излучению. Поскольку большинство ядерных материалов излучает гамма-квантов в 10 и более раз больше, чем нейтронов, чувствительность нейтронного детектора к гамма-излучению является важным критерием при его выборе. В измерениях отработавшего топлива

при мощности дозы гамма-излучения 1000 Р/ч и более, чувствительность детектора к гамма-излучению может стать определяющим фактором.

В любом детекторе гамма-кванты могут передавать энергию электронам в процессе комптоновского рассеяния (см. главу 2), подобно тому, как нейтроны передают энергию ядрам путем рассеяния или в ядерных реакциях. Комптоновское рассеяние может иметь место на стенках детектора или на атомах газа-наполнителя с образованием высокоэнергетического электрона, который, в свою очередь, при пересечении объема детектора ионизирует газ. В некоторых детекторах электронные импульсы, вызванные гамма-квантами, сравнимы по высоте с импульсами от нейтронов; в других детекторах они значительно меньше, но их наложения в течение времени разрешения электроники детектора могут давать импульсы, сравнимые с импульсами нейтронов. При оценке относительной величины отклика детектора от нейтронов и гамма-квантов следует учитывать четыре фактора.

1. Использование защитного экрана от гамма-излучения существенно влияет на относительную величину отклика детектора. Например, при облучении детектора нейтронами деления с энергией 1 МэВ в присутствии гамма-квантов с энергией 1 МэВ экран из свинца толщиной 5 см обеспечивает поглощение около 0,1 % нейтронов и 90 % гамма-квантов.

2. Конструкция и материалы некоторых детекторов способствуют поглощению нейтронов. В табл. 13.1 представлены характеристики детекторов тепловых и быстрых нейтронов. Из таблицы видно, что вероятность поглощения тепловых нейтронов значительно выше вероятности поглощения гамма-квантов. При регистрации быстрых нейтронов вероятности взаимодействия с материалом детектора быстрых нейтронов и гамма-квантов сопоставимы.

Таблица 13.1 – Вероятность взаимодействия нейтронов и гамма-квантов с материалами пропорциональных счетчиков и сцинтилляторов

	Вероятность взаимодействия	
	тепловые нейтроны	гамма-кванты с энергией 1 МэВ
<u>Материалы детекторов тепловых нейтронов</u>		
³ He в трубке с Ø 2,5 см под давлением 4 атм	0,77	0,0001
Ag в трубке с Ø 2,5 см под давлением 2 атм	0,0	0,0005
BF ₃ в трубке с Ø 5,0 см под давлением 0,66 атм	0,29	0,0006
Алюминиевая стенка трубки толщиной 0,8 мм	0,0	0,014
	Вероятность взаимодействия	
	нейтроны с энергией 1 МэВ	гамма-кванты с энергией 1 МэВ
<u>Материалы детекторов быстрых нейтронов</u>		
⁴ He в трубке с Ø 5,0 см под давлением 18 атм	0,01	0,001
Алюминиевая стенка трубки толщиной 0,8 мм	0,0	0,014
Сцинтиллятор толщиной 5 см	0,78	0,26

Таблица 13.2 – Количество энергии, передаваемой нейтронами и гамма-квантами материалам пропорциональных счетчиков и сцинтилляторов

	Пробег альфа-частиц или протонов, см	dE/dx для электронов с энергией 400 кэВ, кэВ/см	Среднее количество энергии, переданной в нейтронной реакции, кэВ	Энергия, переданная электронами, кэВ*	Отношение количества энергии, переданной нейтронами и электронами
<u>Материалы детекторов тепловых нейтронов</u>					
³ He в трубке Ø 2,5 см, 4 атм	2,1	1,1	~500	4,0	125
³ He в трубке Ø 2,5 см, 4 атм + Ag, 2 атм	0,5	6,7	~750	24,0	30
BF ₃ в трубке Ø 5,0 см, 0,66 атм	0,7	3,6	~2300	25,7	90
<u>Материалы детекторов быстрых нейтронов</u>					
⁴ He в трубке Ø 5,0 см, 18 атм	0,1	6,7	1000	48	20
Сцинтиллятор толщиной 5 см	0,001	2000	1000	400	2,5

* Длина пробега электронов рассчитывалась как $\sqrt{2}$ × диаметр трубки.

3. Материалам некоторых детекторов нейтроны передают больше энергии, чем гамма-кванты. Нейтроны могут вызывать ядерную реакцию, в ходе которой высвобождается больше энергии, чем передается электрону при комптоновском рассеянии гамма-квантов (средняя энергия, теряемая гамма-квантом с энергией 1 МэВ, равна примерно 400 кэВ). Кроме того, в газонаполненных детекторах длина пробега электрона обычно значительно больше длины пробега тяжелых заряженных частиц, образующихся при нейтронных взаимодействиях. Если заданное давление газа должно обеспечить полное торможение лишь тяжелых заряженных частиц, то электроны будут покидать объем трубки, передавая газу лишь незначительную часть своей энергии. В табл. 13.2 приведены некоторые цифры, иллюстрирующие вышесказанное. В ней также показано, что при регистрации быстрых нейтронов пластмассовыми сцинтилляторами относительная отдача энергии нейтронами и гамма-квантами примерно одинакова.

4. Скорость собирания зарядов для регистрации нейтронов и гамма-квантов может отличаться. Она во многом зависит от выбора газа-наполнителя или материала сцинтиллятора. В газонаполненных детекторах большей длины пробега электрона, образовавшегося в результате взаимодействия гамма-кванта с газом, соответствует большее время собирания зарядов. Усилитель с быстрым дифференцированием соберет тогда относительно меньшее число зарядов, образованных гамма-квантами, и большее число зарядов, образованных в нейтронных взаимодействиях. Для сцинтилляторов это различие не так очевидно. В некоторых

случаях, однако, можно отличить импульсы от нейтронов и гамма-квантов посредством дискриминации по форме импульса (см. раздел 13.5.3).

Чтобы добиться надежной дискриминации гамма-излучения, часто необходимо использовать определенные материалы или материалы определенной плотности, которые не являются оптимальным выбором для регистрации нейтронов. Результатом этого может стать снижение эффективности регистрации нейтронов. В табл. 13.3 приведены данные по эффективности регистрации нейтронов и приблизительные предельные мощности дозы гамма-излучения для различных типов нейтронных детекторов. Эффективность детектора определяется как вероятность регистрации нейтрона определенной энергии при единичном пересечении рабочей области детектора. Фактическая эффективность детектора как целостной системы зависит от его геометрии. Полученная эффективность может оказаться ниже расчетной, которая приведена в табл. 13.3. Дополнительная информация по данным детекторам и их чувствительности к гамма-излучению дана в последующих разделах.

Таблица 13.3 – Эффективность и чувствительность к гамма-квантам некоторых детекторов нейтронов

Тип детектора	Размер	Материал, активно поглощающий нейтроны	Энергия нейтронов	Эффективность регистрации нейтронов*, %	Чувствительность к гамма-квантам**, Р/ч
Пластмассовый сцинтиллятор	Толщина 5 см	¹ H	1 МэВ	78	0,01
Жидкий сцинтиллятор	Толщина 5 см	¹ H	1 МэВ	78	0,1
Литиевое стекло	Толщина 1 мм	⁶ Li	Тепловая	50	1
Детектор Хорняка	Толщина 1 мм	¹ H	1 МэВ	1	1
Метан под давлением 7 атм	Ø 5 см	¹ H	1 МэВ	1	1
⁴ He под давлением 18 атм	Ø 5 см	⁴ He	1 МэВ	1	1
³ He, 4 атм, и Ag, 2 атм	Ø 2,5 см	³ He	Тепловая	77	1
³ He, 4 атм, и 5 % CO ₂	Ø 2,5 см	³ He	Тепловая	77	10
BF ₃ под давлением 0,66 атм	Ø 5 см	¹⁰ B	Тепловая	29	10
BF ₃ под давлением 1,18 атм	Ø 5 см	¹⁰ B	Тепловая	46	10
Камера с покрытием из ¹⁰ B	0,2 мг/см ²	¹⁰ B	Тепловая	10	10 ³
Камера деления	2,0 мг/см ²	²³⁵ U	Тепловая	0,5	10 ⁶ – 10 ⁷

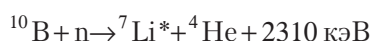
* Вероятность взаимодействия нейтронов, падающих под прямым углом к поверхности детектора

** Приблизительный верхний предел мощности дозы гамма-излучения, при которой еще можно получать сигналы на выходе детектора

13.4 ГАЗОНАПОЛНЕННЫЕ ДЕТЕКТОРЫ

13.4.1 Детекторы тепловых нейтронов на основе ${}^3\text{He}$ и BF_3

В качестве газов-наполнителей детекторов тепловых нейтронов могут использоваться BF_3 или ${}^3\text{He}$. При использовании BF_3 газ обогащается по изотопу ${}^{10}\text{B}$. Содержание ${}^3\text{He}$ в природном гелии составляет около $10^{-4}\%$, поэтому ${}^3\text{He}$ обычно получают путем выделения из трития при его производстве в специальных ядерных реакторах. В названных газах могут протекать следующие ядерные реакции:



Эти реакции являются экзотермическими и ведут к образованию в газе заряженных частиц высокой энергии. Нейтронные счетчики работают в пропорциональном режиме. Ионизация газа, вызванная заряженными частицами, инициирует процесс газового усиления, предшествующий регистрации нейтронов. Энергия, переданная детектору, представляет собой энергию, выделенную в результате ядерной реакции.

При использовании ${}^3\text{He}$ в результате взаимодействия нейтрона с ядром ${}^3\text{He}$ образуются ядро тритона ${}^3\text{H}$ и протон ${}^1\text{H}$. Энергия реакции, равная 765 кэВ, делится между тритоном и протоном. При взаимодействии нейтрона с ядром ${}^{10}\text{B}$ образуются ядро гелия (альфа-частица) и ядро лития, при этом между ними делится энергия реакции, равная 2310 кэВ. Вероятность реакции, при которой ядро лития образуется в возбужденном состоянии, составляет 94 %. Возбуждение снимается испусканием гамма-квантов с энергией 480 кэВ. Эти гамма-кванты обычно покидают детектор, в этом случае в детекторе остается только 2310 кэВ энергии реакции. Вероятность реакции, при которой ядро лития находится в основном состоянии, составляет 6 %. В этом случае в детекторе остается энергия, равная 2790 кэВ. При указанном режиме реакции образуется небольшой дополнительный пик в спектре амплитуд импульсов счетчиков, наполненных BF_3 .

Сечение реакции на тепловых нейтронах для ${}^3\text{He}$ (уравнение (13.1)) равно 5330 барн, а для ${}^{10}\text{B}$ (уравнение (13.2)) — 3840 барн. Сечения обеих реакций существенным образом зависят от энергии падающих нейтронов E , эта зависимость может быть выражена как $1/\sqrt{E}$. Зависимость сечения этих реакций от энергии нейтронов показана на рис. 13.4 [7]. Например, счетчик диаметром 2,54 см, наполненный ${}^3\text{He}$ под давлением 4 атм, имеет эффективность регистрации тепловых нейтронов ($E = 0,025 \text{ эВ}$), равную 77 %. (Такая конструкция детектора является почти оптимальной для регистрации тепловых нейтронов; увеличение количества ${}^3\text{He}$ лишь незначительно повышает эффективность регистрации и, как правило, нецелесообразно с точки зрения стоимости детектора). При энергии нейтронов 100 эВ эффективность регистрации равна приблизительно 2 %; при 10 кэВ — 0,2 % и при 1 МэВ — 0,002 %. Для достижения максимальной эффективности регистрации, учитывая столь сильную ее зависимость от энергии нейтронов, детекторы, наполненные ${}^3\text{He}$ или BF_3 , обычно окружают полиэтиленом толщиной около 10 см или другими материалами-замедлителями нейтронов. (Более подробно конструкция детекторов рассматривается в главе 14).

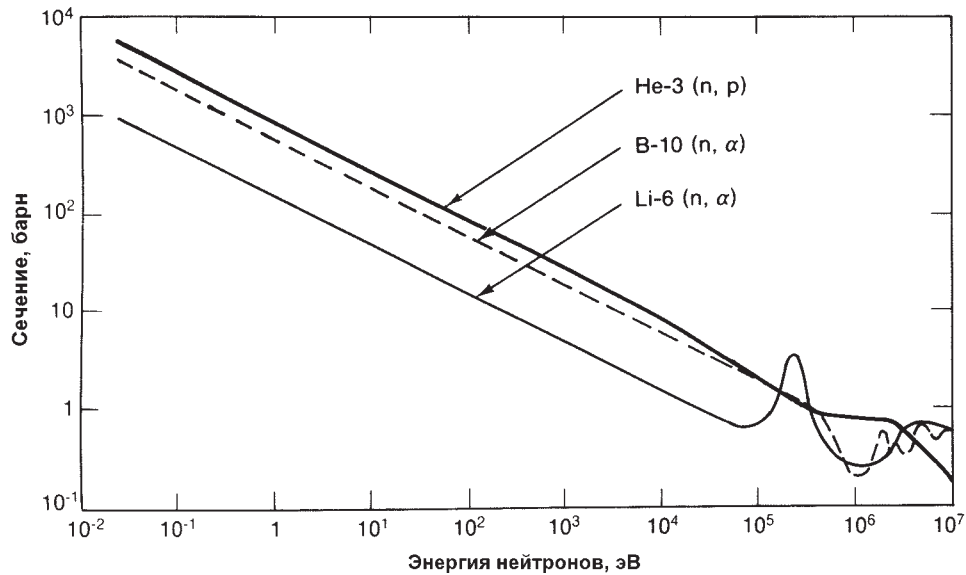


Рис. 13.4. Зависимость сечения реакций ${}^3\text{He}(n,p)$, ${}^{10}\text{B}(n,\alpha)$ и ${}^6\text{Li}(n,\alpha)$ от энергии падающих нейтронов [7]

На рис. 13.5 показан типичный спектр амплитуд импульсов пропорционального счетчика, заполненного ${}^3\text{He}$ [8]. Форма этого спектра определяется прежде всего кинематикой реакции и выбором постоянной времени формирования усилителя. Пик полного поглощения, наблюдаемый на спектре, отражает соби́рание кинетической энергии как протона, так и тритона. Следует подчеркнуть, что положение этого пика соответствует энергии реакции 765 кэВ и не зависит от энергии нейтронов. Если одна из двух частиц попадает в стенку счетчика, то количество энергии, передаваемой газу, уменьшается, что ведет к образованию низкоэнергетического хвоста. Поскольку обе заряженные частицы испускаются в противоположные направления, вероятность регистрации одной из них очень велика. Таким образом, существует широкий провал в форме спектра в области ниже минимальной собираемой энергии и последующий подъем в области малых амплитуд шумов и наложения импульсов от гамма-квантов. Если уровень дискриминации установлен внутри этого провала, незначительные изменения напряжения на трубке или параметров усилителя не окажут влияния на скорость счета детектора. В результате стабильность работы детектирующей системы может быть очень высокой (около 0,1 %).

Выбор постоянной времени усилителя определяет степень соби́рания зарядов в детекторе. При постоянных времени 2 мкс и более происходит почти полное соби́рание зарядов и формирование спектров амплитуд импульсов детектора, подобных представленному на рис. 13.5, с разрешением по пику полного поглощения в диапазоне от 5 до 15 %. При постоянных времени от 0,1 до 0,5 мкс происходит полная потеря формы пика, но становится возможным повысить скорость счета и снизить влияние шумов электроники и импульсов от гамма-квантов. По-

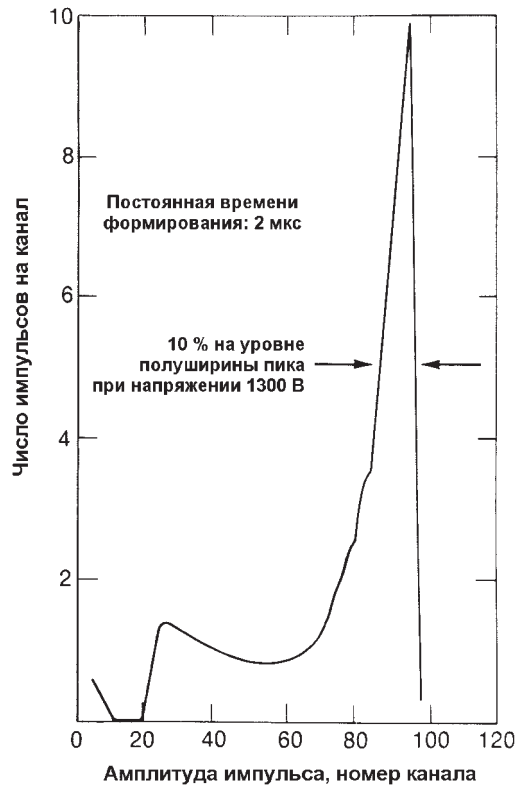


Рис. 13.5. Спектр амплитуд импульсов счетчика, наполненного ^3He , при регистрации тепловых нейтронов

стоянная времени 0,5 мкс является общепринятым компромиссом между получением хорошего разрешения и высокой скорости счета.

Детекторы, наполненные ^3He , обычно работают от источника питания с напряжением в диапазоне от 1200 до 1800 В. При более высоком напряжении повышение эффективности регистрации в результате улучшения сбора первичных зарядов очень невелико, около 1 % на 100 В [8]. (Типичная форма плато счетной характеристики детектора, наполненного ^3He , показана на рис. 13.6). С другой стороны, суммарная величина собранных зарядов вследствие газового усиления с ростом напряжения быстро возрастает, примерно на 100 % на 100 В. В случае, когда ^3He -детекторы используются в виде батарей счетчиков, важно обеспечить хорошее разрешение (порядка 5 % полуширины пика) и однородность газовой смеси с тем, чтобы положение и ширина пика полного поглощения были одинаковыми для всех детекторов.

Спектр амплитуд импульсов пропорционального счетчика, наполненного BF_3 , показан на рис. 13.7 [1]. Разрешение этих счетчиков изменяется в диапазоне от 5 до 30 % и обычно хуже, чем у гелиевых счетчиков. Давление газа колеблется от 0,2 до 2 атм. Чтобы компенсировать низкое давление, диаметр трубки счетчика обычно выбирают равным 5 см. Рабочее напряжение составляет 1400 — 2800 В,

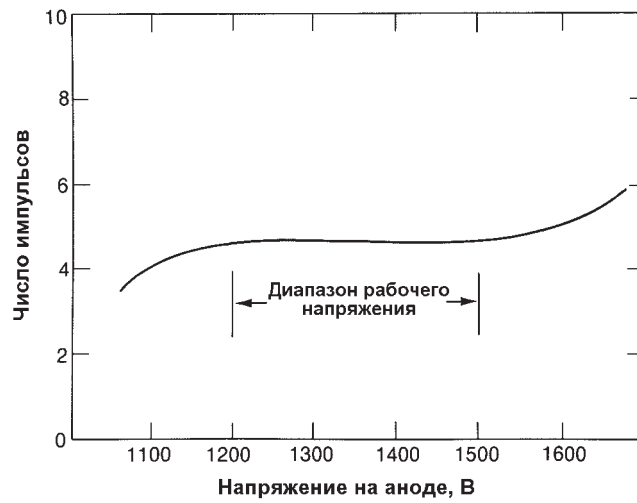


Рис. 13.6. Характерное плато счетной характеристики счетчика, наполненного ^3He

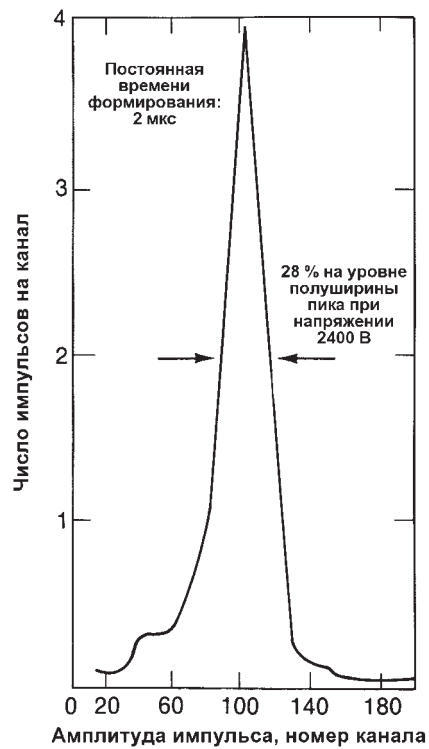


Рис. 13.7. Спектр амплитуд импульсов счетчика, наполненного $^{10}\text{BF}_3$, при регистрации тепловых нейтронов

что выше, чем для гелиевых счетчиков. Плато счетных характеристик схоже с плато для гелиевых счетчиков. Газ VF_3 дешевле ^3He , поэтому и производство счетчиков, наполненных VF_3 , дешевле. Однако большее сечение поглощения ^3He и возможность достижения более высокого давления газа-наполнителя снижает стоимость счетчиков, наполненных ^3He , в пересчете на количество зарегистрированных нейтронов. Другим преимуществом гелиевых счетчиков является то, что гелий — инертный газ, в то время как VF_3 токсичен. Вместе с тем, согласно нормативным документам Министерства транспорта США, газонаполненные детекторы с давлением газа более 2 атм отнесены к категории установок с сжатым газом под высоким давлением, что часто создает трудности при транспортировке гелиевых счетчиков.

Детекторы, наполненные ^3He и VF_3 , широко применяются при проведении активного и пассивного нейтронных анализов, что обусловлено относительно высокой стабильностью их работы, эффективностью и нечувствительностью к гамма-излучению. Как видно из табл. 13.1, эффективность регистрации тепловых нейтронов такими детекторами велика, а вероятность взаимодействия материала детектора с гамма-квантами низка. Кроме того, при взаимодействии с нейтронами газу передается гораздо больше энергии, чем при его взаимодействии с гам-

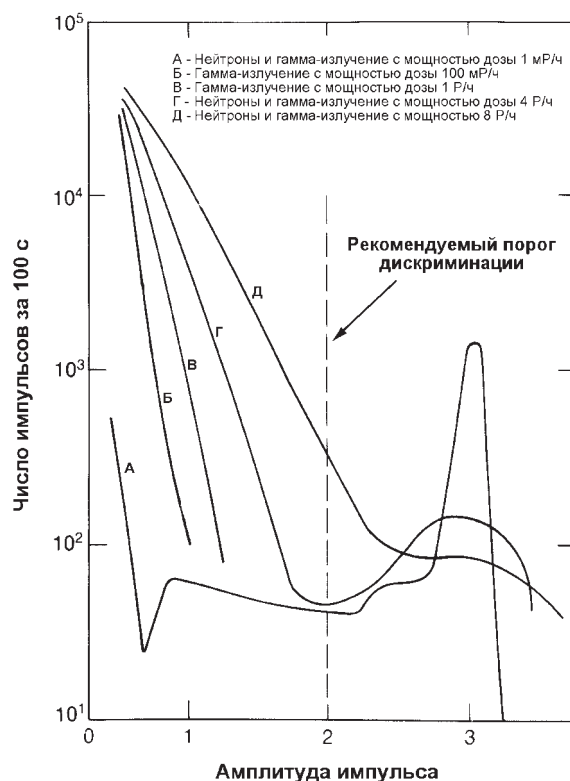


Рис. 13.8. Зависимость счетной характеристики пропорционального счетчика, наполненного ^3He , с диаметром трубки 2,54 см и длиной 50,8 см от мощности дозы гамма-излучения

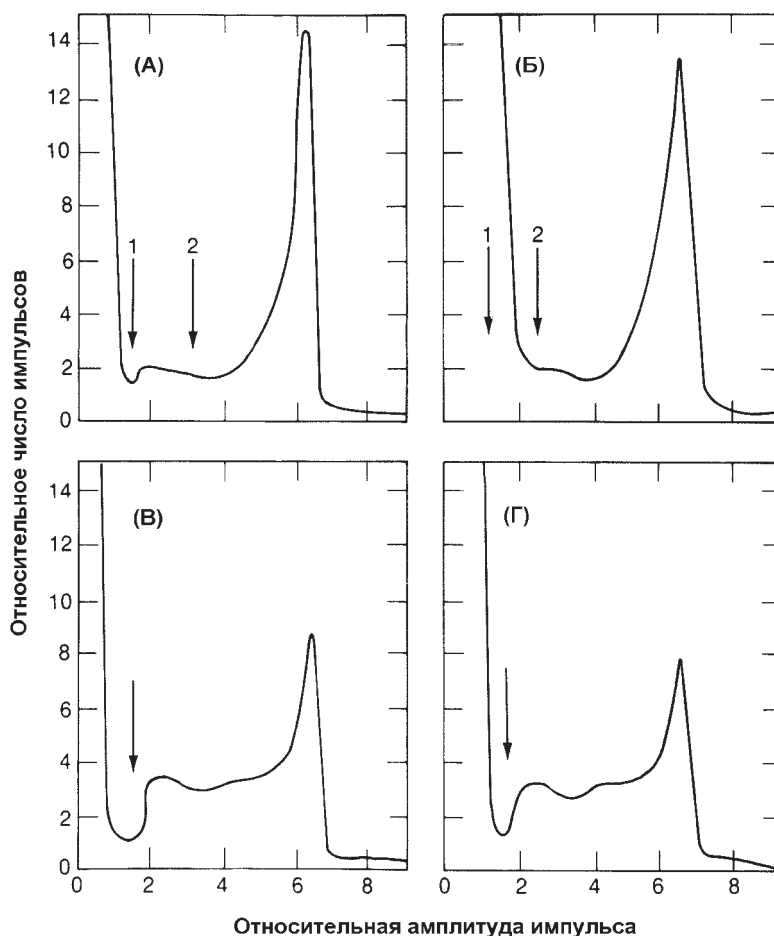


Рис. 13.9. Спектры амплитуд импульсов различных нейтронных детекторов, наполненных ^3He . Постоянная времени формирования усилителя – 0,5 мкс. (А) – смесь ^3He , Ar и CH_4 , Источник нейтронов; (Б) – смесь ^3He , Ar и CH_4 , Источник нейтронов и гамма-излучение с дозой 1 Р/ч; (В) – смесь ^3He и 50 % CO_2 , Источник нейтронов; (Г) – смесь ^3He и 50 % CO_2 , Источник нейтронов и гамма-излучение с мощностью дозы 1 Р/ч

ма-квантами (см. табл. 13.2). Однако, если мощность дозы гамма-излучения больше, чем при использовании обычных плутониевых или урановых образцов, возможно негативное влияние гамма-квантов на отклик детекторов, наполненных ^3He или BF_3 .

В качестве примера на рис. 13.8 показано влияние возрастания мощности дозы гамма-излучения на отклик детектора, наполненного ^3He под давлением 4 атм и аргоном под давлением 2 атм [9]. Предельная мощность дозы гамма-излучения составляет на практике величину порядка 1 Р/ч. Как показано на рис. 13.9, некоторое улучшение спектра амплитуд импульсов может быть достигнуто заменой аргона на CO_2 с концентрацией около 5 % [10]. Это улучшение обусловлено удалением аргона, имеющего относительно высокий атомный номер Z , которому

прямо пропорциональна плотность электронов. Однако удаление аргона сокращает относительную площадь пика полного поглощения, поскольку длина пробега продуктов реакции становится больше, а передаваемая газу энергия меньше. Кроме того, указанное увеличение длины пробега ведет к увеличению времени собирания зарядов, а также к увеличению примерно на 35 % мертвого времени электроники.

Чувствительность детекторов, наполненных BF_3 , к гамма-излучению сравнима или несколько лучше, чем у гелиевых детекторов. Энергия, передаваемая газу в результате взаимодействия нейтрона с ядром ^{10}B , больше энергии от взаимодействия нейтрона с ядром ^3He , но и энергия, передаваемая газу в результате взаимодействия гамма-квантов, также выше (см. табл. 13.2). Сечение реакции взаимодействия нейтрона с ядром ^3He выше, чем с ядром ^{10}B . Сечение взаимодействия гамма-квантов зависит от относительного содержания ^3He , аргона и BF_3 , а также от толщины стенок корпуса счетчика (см. табл. 13.1). Детекторы, наполненные BF_3 , сохраняют работоспособность в гамма-полях с мощностью дозы до 10 Р/ч, что лучше показателей счетчиков, наполненных смесью ^3He с аргоном. Однако рабочие характеристики счетчиков, наполненных смесью ^3He с CO_2 , сопоставимы с характеристиками счетчиков, наполненных BF_3 .

13.4.2 Детекторы быстрых нейтронов, наполненные ^4He и CH_4

Работа детекторов быстрых нейтронов, наполненных ^4He и CH_4 , основана на ионизации газа в счетчике при отдаче легких ядер. Указанное взаимодействие является упругим рассеянием нейтронов легкими ядрами. Если ядром отдачи является только ядро атома водорода (протон), то максимальная энергия, которая может быть передана ядру, равна полной кинетической энергии нейтрона E . Для более тяжелых ядер максимальная передаваемая энергия всегда меньше. Для ядра с массовым числом A максимальная передаваемая энергия равна [7]

$$E(\text{макс}) = \frac{4AE}{(A+1)^2} . \quad (13.3)$$

При единичном рассеянии действительная энергия, передаваемая ядру отдачи, в зависимости от угла рассеяния изменяется в диапазоне от 0 до $E(\text{макс})$, при этом все значения энергии в данном диапазоне равновероятны.

Из уравнения (13.3) видно, что для получения от нейтрона значительной энергии ядро-мишень должно иметь небольшую массу. Наиболее целесообразно использовать водород, как в газообразном состоянии, так и (что привычнее) в составе материалов жидких и пластмассовых сцинтилляторов (см. раздел 13.5). Широко используются детекторы, наполненные метаном (CH_4), имеющим высокое содержание водорода, или ^4He , для которого максимальная передаваемая энергия равна 0,64 E нейтрона. Газ ^3He также соответствует указанным критериям, но он обычно не используется из-за характера реакций, описанных в разделе 13.4.1. На рис. 13.10 проиллюстрирована зависимость сечения упругого рассеяния для ^1H и ^4He от энергии нейтронов. При этом видно, что кривые этой зависимости соответствуют форме энергетического спектра нейтронов деления. Следует отметить, что данные значения сечений упругого рассеяния значительно меньше значений сечений для ^3He и ^{10}B , приведенных на рис. 13.4. Эффективность ре-

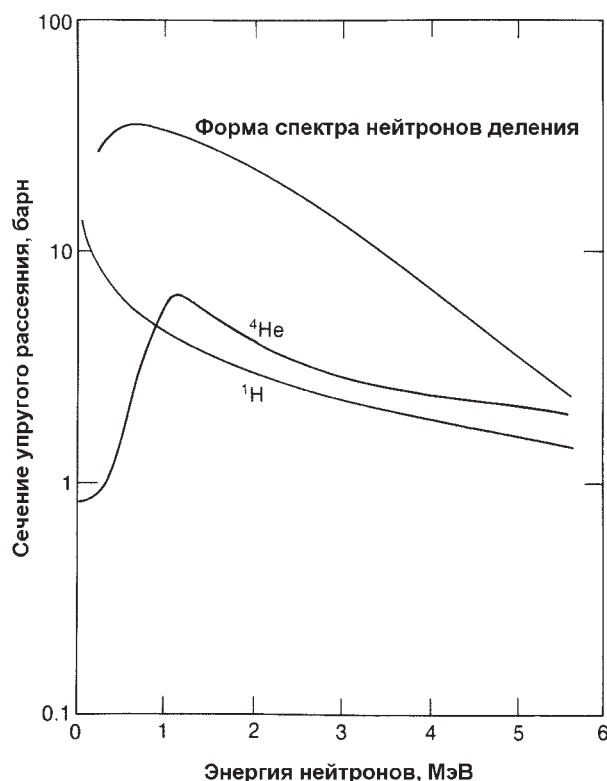


Рис. 13.10. Зависимость сечения упругого рассеяния на ${}^1\text{H}$ и ${}^4\text{He}$ от энергии нейтронов (с наложением на рисунок кривой спектра нейтронов деления)

гистрации быстрых нейтронов по реакции упругого рассеяния приблизительно на два порядка ниже, чем эффективность захвата тепловых нейтронов. Таким образом, единичный детектор, наполненный ${}^4\text{He}$ или CH_4 , имеет собственную эффективность около 1 %.

Данные газонаполненные счетчики работают в режиме пропорциональных счетчиков при напряжении питания в диапазоне от 1200 до 2400 В. Давление газа в счетчиках, наполненных ${}^4\text{He}$, обычно колеблется от 10 до 20 атм. По сравнению с ${}^4\text{He}$ многоатомные газы CH_4 или H_2 требуют более высокого рабочего напряжения, имеют несколько меньшую эффективность, более низкое давление газа и обеспечивают более короткое время нарастания импульсов. Чувствительность двух этих типов счетчиков к гамма-излучению примерно одинакова. При относительно высоком уровне дискриминации регистрация нейтронов может производиться в гамма-полях с мощностью дозы около 1 Р/ч [11].

На рис. 13.11 представлен спектр амплитуд импульсов пропорционального счетчика, наполненного ${}^4\text{He}$, полученный при регистрации нейтронов источника ${}^{252}\text{Cf}$. Наблюдаемая форма спектра определяется следующими факторами:

1. энергетическим спектром нейтронов спонтанного деления ${}^{252}\text{Cf}$ (см. рис. 11.20);
2. вероятностью передачи ядру отдачи энергии в диапазоне от 0 до $E(\text{макс})$;

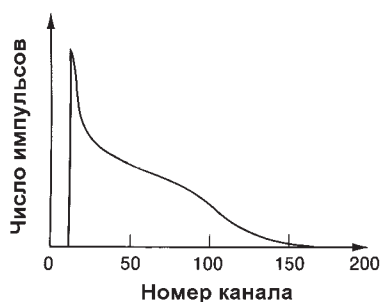


Рис. 13.11. Спектр амплитуд импульсов пропорционального счетчика, наполненного ^4He , при регистрации нейтронов источника ^{252}Cf

3. вероятностью многократных рассеяний нейтронов, а также вероятностью потери энергии ядер отдачи в стенках корпуса счетчика [12] (в качестве примера см. также рис. 8.14);
4. регистрацией низкоамплитудных шумовых импульсов и наложений импульсов от гамма-квантов.

В результате воздействия указанных факторов в начальном энергетическом спектре нейтронов четко выраженный пик может практически отсутствовать, как показано на рис. 13.11. Несмотря на это, часть информации сохраняется, а часть — может быть получена посредством учета перечисленных факторов. Как правило, порог дискриминации устанавливается достаточно высоким для исключения шумов и импульсов от гамма-квантов в низкоэнергетической области и одновременно достаточно низким для регистрации значительного количества импульсов от нейтронов средней и высокой энергии. Так как порог дискриминации устанавливается по резко нисходящей кривой, детекторы на ядрах отдачи менее стабильны, чем детекторы тепловых нейтронов.

Несмотря на такие очевидные недостатки детекторов на ядрах отдачи, как их низкие эффективность и стабильность, регистрация нейтронов этими детекторами осуществляется без предварительного замедления нейтронов. Таким образом, регистрация нейтронов осуществляется очень быстро, и при этом частично сохраняется информация об их начальной энергии. Счетчики быстрых нейтронов позволяют регистрировать нейтроны с энергией от 20 кэВ до 20 МэВ, некоторые из них используются для быстрого счета совпадений с временем разрешения от 10 до 100 нс. Можно также установить такой порог дискриминации, при котором не будут регистрироваться импульсы от гамма-квантов и низкоэнергетических нейтронов, что имеет особое значение в системах активного анализа.

13.4.3 Камеры деления

Камеры деления являются разновидностью газонаполненных счетчиков, рассмотренных выше. Они регистрируют нейтроны, вызывающие вынужденное деление ядер делящегося материала, которым покрыты внутренние стенки камеры. Часто внешне камеры деления похожи на другие газонаполненные счетчики, хотя существуют камеры меньших диаметров и других форм. В качестве делящегося материала обычно используется высокообогащенный ^{235}U . На внутренние стенки методом электролиза (иногда испарением или кистью) наносится очень тонкий слой урана (поверхностная плотность от 0,02 до 2 мг/см²), который находится в непосредственном контакте с газом детектора. Образующиеся в результате деления осколки движутся практически в противоположных направлениях.

Ионизация, вызванная попавшим в газ осколком деления, регистрируется детектором; осколок, движущийся в противоположном направлении, поглощается стенками детектора [13].

Между осколками распределяется энергия деления, равная примерно 160 МэВ, но длина пробега осколков невелика. Средняя длина пробега осколков деления в таком типичном материале покрытия, как уран, не превышает 7 мкм, что соответствует толщине покрытия, примерно равной 13 мг/см². Следовательно, осколки деления, образовавшиеся в стенках детектора на глубине более 7 мкм, не могут достичь газа и вызвать ионизацию. Более того, большинство осколков движутся по касательным к поверхности покрытия, и поэтому длина их пробега больше минимально необходимой для выхода в газ. Поскольку для обеспечения выхода осколков деления в газ слой покрытия должен быть тонким, в камерах деления используются незначительные количества делящегося материала, что обуславливает их низкую эффективность регистрации. Собственная эффективность регистрации тепловых нейтронов камерами деления обычно составляет 0,5 – 1 %. Регистрация быстрых нейтронов камерами деления также возможна, но с еще более низкой эффективностью.

Камеры деления работают в режиме ионизационной камеры, поскольку ионизация, вызванная осколками деления, вполне достаточна и дополнительного газового усиления не требуется. Схема электроники, часто используемая совместно с камерами деления, показана на рис. 13.1. Напряжение источника питания выбирается в диапазоне от 200 до 600 В. Газом-наполнителем обычно является смесь аргона (90 %) и метана (10 %). При нормальном давлении пробег осколков деления в газе составляет 2 см.

На рис. 13.12 показан спектр амплитуд импульсов от камеры деления с покрытием из ²³⁵U [14]. Если потери энергии в урановом покрытии или стенках корпуса не слишком велики, наблюдается двугорбая форма спектра, соответствующая энергиям легкого и тяжелого осколков деления (около 70 и 100 МэВ). Поскольку почти любой делящийся материал содержит альфа-излучающие изотопы, в низкоэнергетической области спектра также наблюдаются фоновые импульсы, образованные альфа-частицами. Энергия альфа-частиц равна примерно 5 МэВ, в то время как энергия осколков деления на порядок выше. Таким образом порог дискриминации может устанавливаться выше сигналов от альфа-частиц. При таком

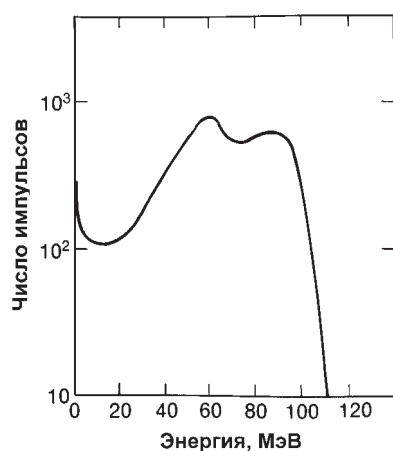


Рис. 13.12. Спектр амплитуд импульсов камеры деления с покрытием из ²³⁵U с поверхностной плотностью около 0,8 мг/см²

пороге часть импульсов от осколков с низкими энергиями теряется. Альфа-активность плутония выше, чем у урана, следовательно, при использовании камер деления с покрытием из плутония фон альфа-частиц будет выше и порог дискриминации должен устанавливаться также выше, чем для камер с покрытием из урана.

Ввиду значительной энергии осколков деления, из всех нейтронных детекторов камеры деления наименее чувствительны к гамма-излучению (примерно до 10^6 Р/ч). Лишь использование камер деления дает возможность осуществить прямой нейтронный контроль отработавшего ядерного топлива без дополнительной защиты. Камеры деления позволяют проводить пассивные измерения в больших нейтронных и гамма-полях. Присущая камерам деления низкая эффективность компенсируется возможностью регистрации значительного числа нейтронов.

13.4.4 Детекторы с покрытием из ^{10}B

Детекторы с покрытием из ^{10}B занимают промежуточное положение между пропорциональными счетчиками, наполненными ^3He и $^{10}\text{BF}_3$, и камерами деления с точки зрения эффективности регистрации нейтронов и чувствительности к гамма-излучению. Конструктивно детекторы с покрытием из ^{10}B похожи на камеры деления, использующие в качестве радиатора чувствительный к нейтронам бор, который очень тонким слоем (около $0,2$ мг/см²) наносится на стенки детектора.

Регистрация нейтронов детекторами с покрытием из ^{10}B основана на реакции, выраженной уравнением (13.2). В газ попадает либо альфа-частица, либо ядро лития (но не обе частицы, поскольку они излучаются в противоположные стороны), и происходит процесс регистрации. Так как пробег альфа-частиц в боре составляет около 1 мг/см², покрытие должно быть тонким; эффективность регистрации (порядка 10%) при этом ниже, чем у счетчиков, наполненных BF_3 . Однако, поскольку ядерная реакция протекает не в газе-наполнителе, состав газа может быть оптимизирован с точки зрения временного разрешения. В качестве газа-наполнителя обычно используется аргон под давлением $0,25$ атм с небольшой добавкой CO_2 . Счетчик работает в пропорциональном режиме при рабочем напряжении от 600 до 850 В [15].

На рис. 13.13 показан спектр амплитуд импульсов камеры с покрытием из ^{10}B , описанной выше. Ступенчатая форма спектра обусловлена тем, что в газ могут попадать как альфа-частицы, так и ядра лития. Поскольку более легкая альфа-частица уносит больше энергии, импульсам альфа-частиц соответствует на рисунке крайняя правая ступень. Из-за потери энергии частиц в борном покрытии стенок образуется большое число низкоэнергетических импульсов. Порог дискриминации устанавливается обычно выше этих низкоэнергетических импульсов. Из-за отсутствия четко определенного "провала", по которому мог бы устанавливаться порог дискриминации, наклон счетной характеристики составляет примерно 10 % на 100 В [15].

Счетчики с покрытием из ^{10}B имеют среднюю эффективность регистрации тепловых нейтронов и низкую эффективность регистрации быстрых нейтронов. Их удобно использовать для регистрации нейтронов в высоких гамма-полях. При наличии соответствующей электроники эти детекторы могут работать в гамма-полях с мощностью дозы до 1000 Р/ч с 50 % потерей эффективности регистра-

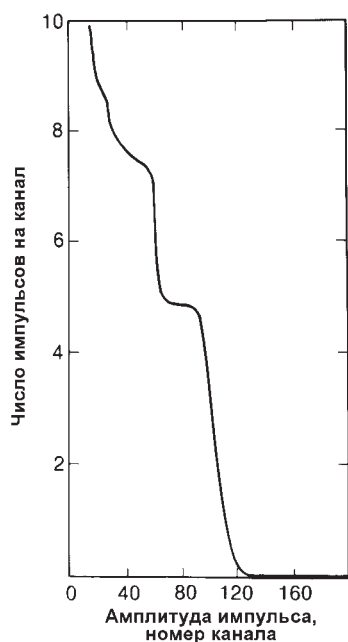


Рис. 13.13. Спектр амплитуд импульсов пропорционального счетчика с покрытием из ^{10}B

ции нейтронов, которая является следствием установления более высокого порога дискриминации для исключения импульсов от гамма-квантов [15]. Меньшая чувствительность счетчиков с покрытием из ^{10}B по сравнению со счетчиками, наполненными BF_3 , к гамма-излучению обусловлена более низкими давлением газа-наполнителя и рабочим напряжением, что уменьшает амплитуду импульсов от гамма-квантов по сравнению с амплитудой импульсов от нейтронов.

13.5 ПЛАСТМАССОВЫЕ И ЖИДКИЕ СЦИНТИЛЛЯТОРЫ

13.5.1 Введение

Использование пластмассовых и жидких органических сцинтилляторов для регистрации быстрых нейтронов объясняется их коротким временем формирования отклика и умеренной стоимостью. Быстрота отклика особенно важна при регистрации совпадений, когда соотношение действительных и случайных совпадений может иметь существенное влияние на статистическую точность измерений. Хотя органические сцинтилляторы имеют время формирования отклика порядка нескольких наносекунд, время разрешения совпадений при анализе обычно определяется динамическим диапазоном времени (десятки наносекунд) переноса быстрых нейтронов от образца к детектору. (Нейтрон с энергией 500 кэВ проходит расстояние в 1 м примерно за 100 нс). Время разрешения установок регистрации совпадений, в которых регистрации предшествует замедление быстрых нейтронов, с другой стороны, определяется динамическим диапазоном времени (десятки микросекунд), необходимого для термализации нейтронов.

Основным недостатком органических сцинтилляторов при проведении неразрушающего анализа является их высокая чувствительность к гамма-излуче-

нию. Вероятность регистрации ими нейтронов и гамма-квантов примерно одинакова, а спектры амплитуд импульсов от излучений обоих типов с одинаковой энергией перекрываются. Поэтому амплитуда импульса сама по себе дает немного информации о типе частицы. Вместе с тем, с некоторыми органическими сцинтилляторами может использоваться электроника, позволяющая методом дискриминации по форме импульса осуществлять эффективное разделение между сигналами от нейтронов и гамма-квантов.

13.5.2 Механизмы взаимодействия нейтронов и гамма-квантов с материалом детектора

Быстрые нейтроны взаимодействуют с материалом сцинтиллятора в реакциях упругого рассеяния на ядрах (в основном углерода и водорода). Нейтроны спектра деления или (α, n)-реакций вызывают сцинтилляции за счет реакций отдачи в основном на ядрах водорода (протонах). Это происходит вследствие того, что при упругом рассеянии на протоне нейтрон может передавать ему 100 % своей энергии, в то время как при упругом рассеянии на ядре ^{12}C ему может быть передано не более 28 % энергии нейтрона. Кинетическая энергия протонов отдачи поглощается сцинтиллятором и в конечном итоге преобразуется в тепло и видимый свет. Свет может быть собран фотоэлектронным умножителем (ФЭУ), оптически соединенным со сцинтиллятором, и преобразован в электронный импульс, амплитуда которого пропорциональна кинетической энергии протона отдачи.

Хороший сцинтилляционный материал, используемый для регистрации нейтронов, имеет относительно высокую конверсионную эффективность (отношение энергии световой вспышки к энергии ядер отдачи), достаточную прозрачность для собственного излучения и спектр световой вспышки, соответствующий области чувствительности фотоумножителя. Многие выпускаемые промышленностью сцинтилляторы, такие как NE102 и NE213, вполне удовлетворяют этим критериям. В табл. 13.4 приведены характеристики пластмассовых и жидких сцинтилляторов, получивших широкое распространение. Максимум в спектре светового излучения соответствует длине волны ~ 400 нм. Для такого излучения толщина слоя светового поглощения в сцинтилляторе находится в диапазоне от 1 до 5 м. Поскольку свет может проходить в сцинтилляционных материалах значительные расстояния без существенного поглощения, применение органических сцинтилляторов с размерами порядка 1 м не является каким-либо исключением.

Хотя механизм передачи кинетической энергии быстрых нейтронов протонам отдачи в органических сцинтилляторах аналогичен механизму ее передачи в пропорциональных счетчиках, наполненных водородом или метаном, сам процесс регистрации имеет ряд существенных отличий. Они в значительной степени обусловлены различием физических свойств органических сцинтилляторов и газов. Например, плотность газа в пропорциональных счетчиках на протонах отдачи составляет порядка 10^{-3} г/см³, в то время как плотность органических сцинтилляторов — около 1 г/см³. Это различие в плотности означает, что для заданной длины пробега в этих материалах вероятность взаимодействия как для нейтронов, так и для гамма-квантов будет значительно выше для сцинтилляторов, чем для пропорциональных счетчиков. На рис. 13.14 отображена зависимость вероятности взаимодействия, выраженной в виде линейного коэффициента ослабления, с материалом сцинтиллятора NE213 от энергии. Из рисунка видно, что вероятность взаимодействия нейтронов с энергией 1 МэВ с материалом жидкого

Таблица 13.4 – Характеристики некоторых пластмассовых и жидких сцинтилляторов для регистрации нейтронов

Тип	Обозначение	Фирма-изготовитель*	Световыход по отношению к антрацену, %	Время выщелачивания, нс	Длина волны светового излучения максимальной интенсивности, нм	Отношение содержания водорода и углерода	Примечания
Пластмассовые	NE102A	1	65	2,4	423	1,104	Обычное использование
	NE104	1	68	1,9	406	1,100	Быстрое формирование
	NE111A	1	55	1,6	370	1,103	Очень быстрое формирование
Жидкие	Пилот В (Pilot В)	1	68	1,8	408	1,100	Обычное использование
	Пилот U (Pilot U)	1	67	1,4	391	1,100	Очень быстрое формирование
	NE211	1	78	2,6	425	1,248	Обычное использование
	NE213	1	78	3,7	425	1,213	Быстрые нейтроны (МНД)**
	BC501	2	78	3,7	425	1,213	Быстрые нейтроны (МНД)**
	NE228	1	45		385	2,11	Высокое отношение содержания водорода к углероду
	NE311	1	65	3,8	425	1,701	Активирован бором
	NE323	1	60	3,8	425	1,377	Активирован гадолинием

* Код фирмы: 1 – "Нуклеар Энтерпрайзиз, Лтд." (Nuclear Enterprises, Ltd., 2 – "Бикрон Корп." (Bicron Corp.)

** МНД – мгновенные нейтроны спонтанного деления.

сцинтиллятора толщиной 5 см равна примерно 78 %, а вероятность взаимодействия гамма-квантов с энергией 1 МэВ — примерно 26 %.

Пробеги протонов и электронов отдачи в сцинтилляторе будут значительно меньше, чем в пропорциональных счетчиках. За исключением случаев взаимодействия вблизи границ детектора этот факт при рассмотрении поведения протонов отдачи не имеет большого значения. Однако важным следствием сокращения пробегов электронов отдачи в органических сцинтилляторах может быть торможение электронов высоких энергий в объеме детектора. Например, электроны с энергией 500 кэВ могут полностью отдавать свою энергию сцинтиллятору, в то время как в пропорциональном счетчике они отдают лишь незначительную часть ее.

Кроме того, световыходы для электронов и протонов отдачи одинаковой начальной энергии различны. Это обусловлено разницей в плотности ионизации вдоль пути торможения этих частиц. Как видно из рис. 13.15, световыход для про-

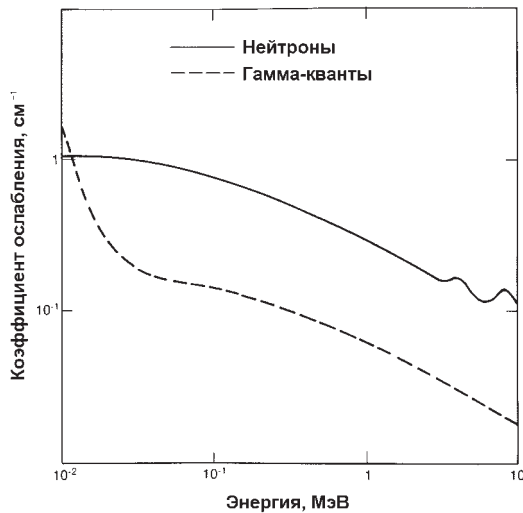


Рис. 13.14. Зависимость коэффициента ослабления от энергии падающих нейтронов и гамма-квантов для сцинтиллятора NE213

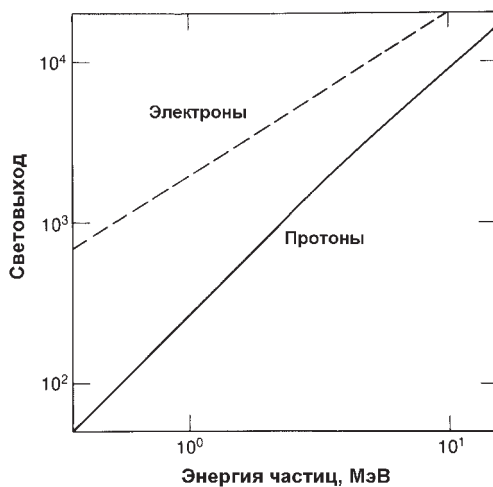


Рис. 13.15. Зависимость световыхода от энергии электронов и протонов для сцинтиллятора NE102 [7, 16]

тонов всегда меньше, чем для электронов той же энергии [7 и 16]. Зависимость световыходов для этих двух частиц от энергии также различна. (Ядра отдачи ^{12}C дают меньше света, чем протоны отдачи той же энергии, что еще больше уменьшает их и так незначительный вклад в процесс регистрации.) Обычно световыходы для электронов с энергией 60 кэВ и протонов с энергией 500 кэВ в органических сцинтилляторах примерно одинаковы.

13.5.3 Дискриминация по форме импульса

Механизм преобразования части кинетической энергии частиц отдачи в видимый свет чрезвычайно сложен, однако установить несколько его особенностей достаточно легко. Основные компоненты сцинтилляции имеют время высвечивания порядка нескольких наносекунд. Из этого следует, что органические сцинтилляторы могут работать при очень высокой скорости счета. Однако у многих сцинтилляторов есть более слабый, но долгоживущий компонент излучения, который соответствует запаздывающей флюоресценции. Поэтому полный световыход может быть представлен суммой двух экспоненциальных составляющих, соответствующих быстрому и медленному компонентам сцинтилляции. Медленный компонент имеет время высвечивания, равное нескольким сотням наносекунд. Часть светового излучения, наблюдаемого в этом слабом медленном компоненте, определяется типом частицы, вызывающей излучение. Более тяжелые частицы имеют большую ионизирующую способность и образуют большее излучение запаздывающей флюоресценции. На рис. 13.16 показана зависимость световых импульсов в стильбене, являющимся твердым органическим кристаллическим сцинтиллятором, от времени, в течение которого кристалл находится под воздействием различных видов излучений. Наличие такой временной зависимости позволяет идентифицировать импульсы от частиц, имеющих различную скорость потери энергии, но образующих в сцинтилляторе световое излучение примерно одинаковой интенсивности. Этот способ называется дискриминацией по форме импульса и используется для исключения импульсов гамма-квантов из потока при регистрации нейтронных импульсов в органических сцинтилляторах.

Дискриминация по форме импульса достигается при помощи электроники, использующей различия во времени высвечивания при регистрации органическим сцинтиллятором различных излучений. Для дискриминации по форме импульса в органических сцинтилляторах наиболее широко применяется метод, основанный на прохождении импульса с фотоэлектронного умножителя через биполярный формирователь. Пересечение этим биполярным импульсом нулевого уровня зависит от времени нарастания и формы начального импульса, но не зависит от его амплитуды. Таким образом, разделение импульсов по форме достигается измерением интервала времени между фронтом начального импульса, который не зависит от формы импульса, и пересечением нулевого уровня сформированным биполярным импульсом. На рис. 13.17 показана схема, реализующая рассматриваемый метод [18]. На рисунке также схематично изображены импульсы от электронов и протонов в различных точках схемы.

Функционирование схемы дискриминации по форме импульса описывается приведенной чувствительностью. Этот критерий сравнивает расстояние между пиками спектров время-разделенных сигналов от нейтронов и гамма-квантов с суммой полуширин этих пиков (см. рис. 13.18). Приведенная чувствительность

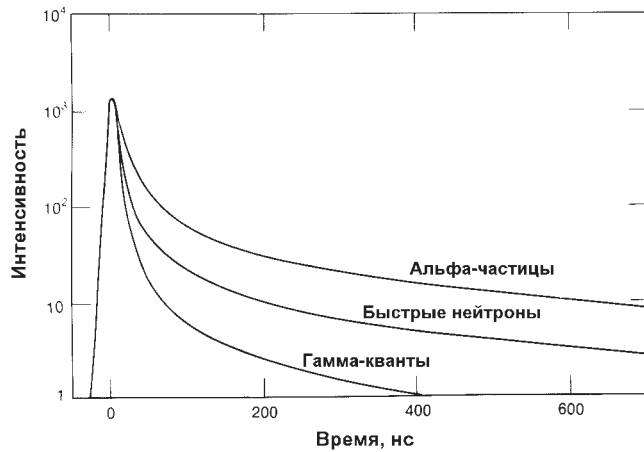


Рис. 13.16. Зависимость интенсивности световых импульсов для стиблена, представленная в логарифмическом масштабе, от времени высвечивания для различных видов излучения [17].

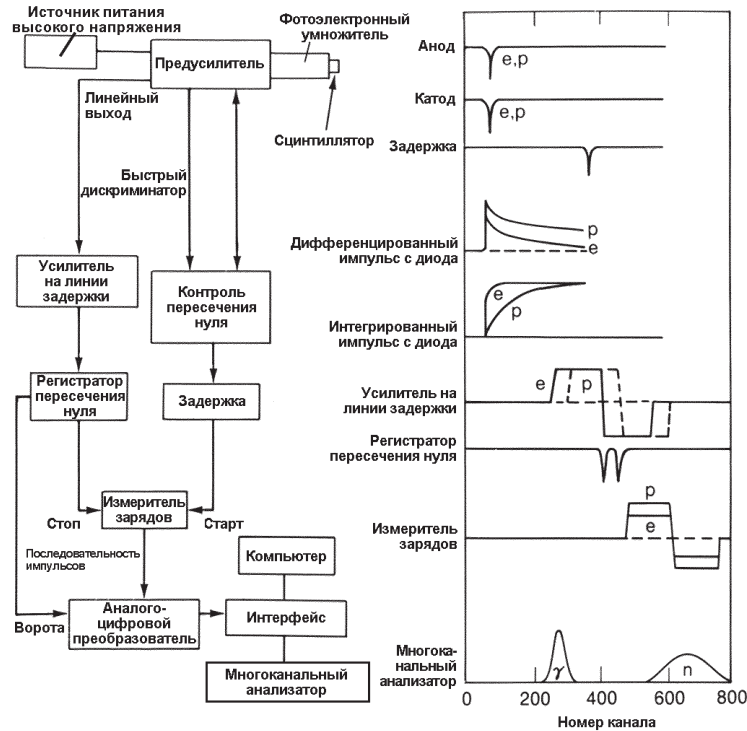


Рис. 13.17. Блок-схема дискриминатора по форме импульса [18]

обычно снижается при увеличении либо динамического диапазона амплитуд входящих импульсов, либо при возрастании общей скорости счета. Есть данные об успешном использовании схемы дискриминации по форме импульса в динамическом диапазоне, равном 100 при скорости счета 10^4 имп./с [18]. На рис. 13.19 показаны результаты экспериментов, полученные с использованием жидкого сцинтиллятора NE218 и плутоний-бериллиевого источника нейтронов и гамма-квантов.

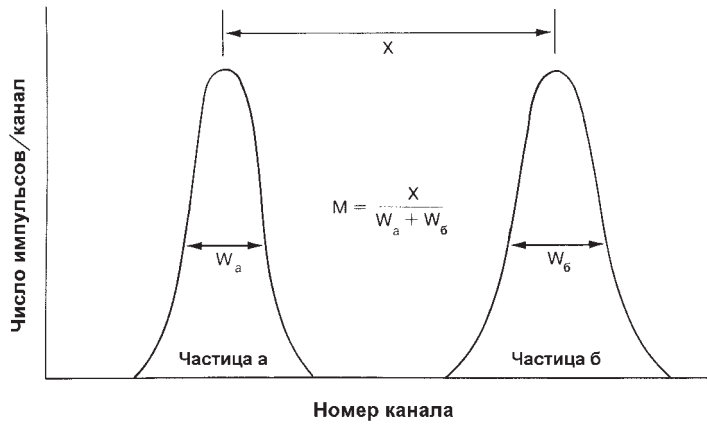


Рис. 13.18. Иллюстрация использования приведенной чувствительности M для оценки схемы дискриминации по форме импульса

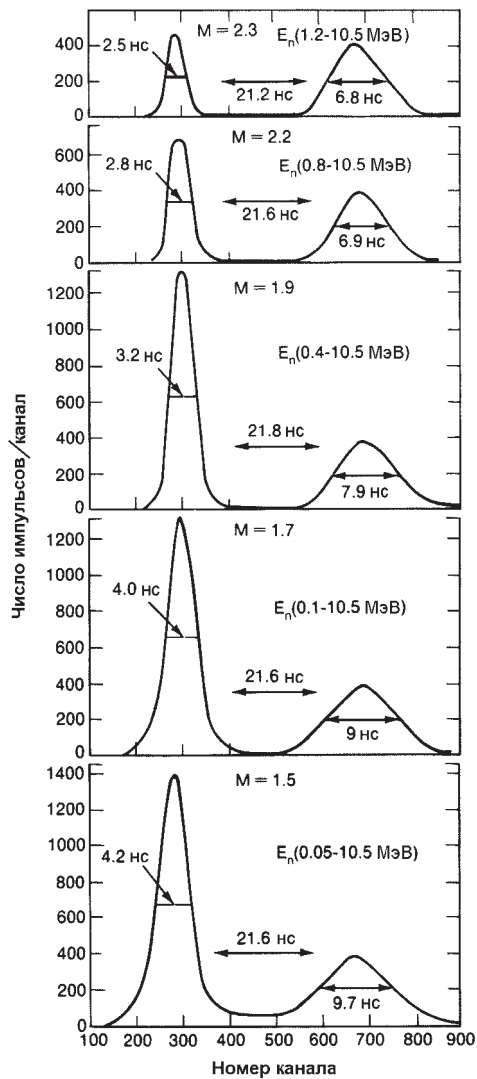


Рис. 13.19. Распределение времени нарастания для различных динамических диапазонов энергий нейтронов для жидкого сцинтиллятора NE218 и плутоний-бериллиевого источника нейтронов и гамма-квантов [18]

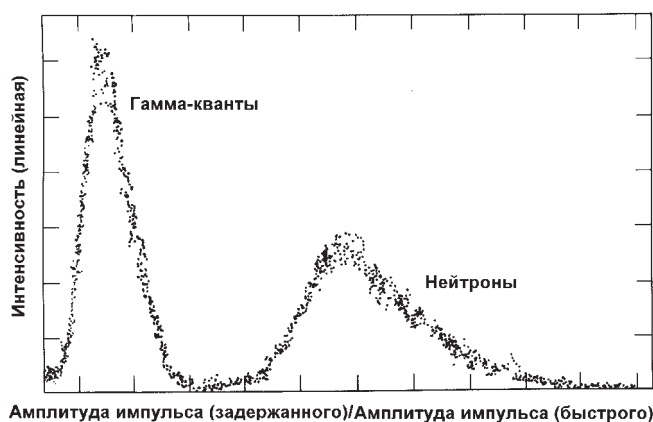


Рис. 13.20. Отношение сигнала АЦП в задержанном временном селекторе к сигналу АЦП в мгновенном временном селекторе для NE213 [18]

Другой широко распространенный способ дискриминации по форме импульса заключается в интегрировании заряда, содержащегося в переднем фронте импульса, и сравнение его с зарядом, содержащимся в заднем фронте импульса. В одной из последних реализаций этого метода [19] импульс с анода ФЭУ расщепляется, после чего передний и задний фронты отдельно анализируются интегрирующим аналого-цифровым преобразователем (АЦП). Отношение цифровых значений зарядов, соответствующих переднему и заднему фронтам, дает спектр дискриминации по форме импульса, подобный тому, который показан на рис. 13.20.

13.6 ДРУГИЕ ТИПЫ ДЕТЕКТОРОВ НЕЙТРОНОВ

В данном разделе рассматриваются некоторые нейтронные детекторы, которые не получили широкого применения в области анализа ядерных материалов. Принцип работы этих детекторов при регистрации нейтронов, как и других детекторов, описанных в данной главе, основан исключительно на реакциях отдачи или ядерных реакциях.

Для повышения эффективности регистрации нейтронов в некоторые сцинтилляторы добавляют материал, активно поглощающий нейтроны. При этом преследуется цель добиться более локализованной и эффективной регистрации нейтронов, чем это возможно при использовании газонаполненных счетчиков. В качестве таких добавок-«наполнителей» обычно используются гадолиний, ^{10}B и ^6Li . При захвате нейтронов образуются заряженные частицы и гамма-кванты, при взаимодействии которых с материалом сцинтиллятора возникает световое излучение. После взаимодействия с нейтроном процесс регистрации протекает так же, как при образовании светового излучения от гамма-квантов. Поскольку сцинтиллятор является и детектором гамма-квантов, его чувствительность к гамма-квантам обычно очень высока. Однако существуют конструкции приборов, позволяющие добиться высокой эффективности регистрации нейтронов при низкой чувствительности к гамма-квантам.

Для регистрации тепловых нейтронов могут успешно использоваться стеклянные сцинтилляторы, наполненные литием, а также кристаллы $\text{ZnS}(\text{Ag})$, диспергированные в стеклянной среде, или силикатные стекла, активированные це-

рием. Тепловые нейтроны вступают в (n, α) -реакцию с ядром ${}^6\text{Li}$, и тяжелые альфа-частицы вызывают сцинтилляцию. Детекторы данного типа могут быть также в виде пластин толщиной около 1 мм. Эффективность регистрации тепловых нейтронов в гамма-полях может достигать 25 – 99 % при мощности дозы гамма-излучения порядка 1 Р/ч. Низкая чувствительность к гамма-излучению обусловлена высоким сечением захвата тепловых нейтронов, выделением в реакции значительной энергии (4,78 МэВ) и небольшой толщиной детектора [7].

При диспергировании кристаллов $\text{ZnS}(\text{Ag})$ в люцит (органическое стекло) возможна регистрация быстрых нейтронов. Механизм взаимодействия представляет собой упругое рассеяние нейтронов на ядрах водорода. Протон отдачи передает свою энергию материалу сцинтиллятора, в результате чего происходит возбуждение кристаллов $\text{ZnS}(\text{Ag})$. Кристаллы $\text{ZnS}(\text{Ag})$ малочувствительны к гамма-излучению, так как для возбуждения кристаллов сульфида цинка, излучающих свет, требуется относительно высокая энергия. Детекторы на основе кристаллов $\text{ZnS}(\text{Ag})$, диспергированных в оргстекло, называются детекторами Хорняка [20]; их эффективность невысока (порядка 1 %), поскольку плохое пропускание света материалом этих детекторов позволяет использовать лишь детекторы небольших размеров. Детекторы в виде тонких пластин использовались для измерения отходов в контейнерах на заводе в Рокки Флэтс [21]. Благодаря свойствам кристаллов $\text{ZnS}(\text{Ag})$ и незначительной толщине детектора, что ограничивает передачу энергии гамма-излучением, детекторы Хорняка могут работать в гамма-полях с мощностью дозы около 1 Р/ч.

Во многих нейтронных детекторах чувствительный к нейтронам материал и электроника представляют собой единый блок. Однако возможно применение другой детектирующей системы, которая более компактна и портативна, с использованием материалов, чувствительных только к нейтронам. Сначала такой материал помещается в заданное место измерений, затем он извлекается для измерения реального потока нейтронов по изменениям в изотопном составе или в структуре кристаллической решетки. В качестве примера можно привести термолюминесцентные дозиметры (ТЛД) на основе кристаллов, которые при нагревании излучают свет, интенсивность которого пропорциональна поглощенной дозе. Термолюминесцентные дозиметры используются преимущественно для измерения дозы гамма-излучения, но существует такой распространенный кристалл, как LiF , чувствительность которого к нейтронам может быть повышена обогащением по ${}^6\text{Li}$ [7].

Другим примером использования материалов, чувствительных к нейтронам, могут служить активируемые фольги, используемые для измерений излучений низкой интенсивности и задач ядерной безопасности. Например, медная фольга использовалась для мониторинга миграции плутония в почве вокруг хранилищ радиоактивных отходов [22]. Механизм регистрации основан на захвате нейтронов ядрами ${}^{63}\text{Cu}$ с образованием ${}^{64}\text{Cu}$, который распадается в ${}^{64}\text{Ni} + e^+$ с периодом 12,7 ч. Фольга достаточно долго облучается для равновесия накопления ${}^{64}\text{Cu}$ и затем измеряется позитронная активность. Таким образом можно контролировать концентрацию плутония до 10 нКи/г почвы.

13.7 ИЗМЕРЕНИЕ ЭНЕРГЕТИЧЕСКИХ СПЕКТРОВ НЕЙТРОНОВ

13.7.1 Введение

Как указывалось в разделе 13.1, пассивные методы нейтронного анализа обычно основаны на измерении количества нейтронов без учета их энергии. Это обусловлено, во-первых, тем, что радиоактивные материалы излучают нейтроны с широкими энергетическими спектрами, изменения которых для различных изотопов незначительны, и, во-вторых, тем, что регистрация нейтронов основана на косвенных методах, при которых сохраняется незначительная информация об энергии нейтронов. В данной главе было показано, что широкий круг взаимодействий в процессе регистрации нейтронов не находится в прямой зависимости от энергии нейтронов. В определенной мере исключение составляют детекторы на ядрах отдачи, такие, как счетчики, наполненные ^4He , и органические сцинтилляторы. Однако ни один из рассмотренных детекторов не позволяет идентифицировать изотопы на основе измерения энергии испускаемых ими нейтронов. Вследствие этого пассивные методы нейтронного анализа обычно основаны на измерении количества тепловых или быстрых нейтронов, иногда посредством подбора детектора или окружающего его материала для регистрации нейтронов в наиболее широком энергетическом спектре. При выборе детекторов также учитывается их способность генерировать быстрые (от 10 до 100 нс) и медленные (от 10 до 100 мкс) выходные сигналы для счета совпадений. Конструкция некоторых детекторов позволяет эффективно регистрировать нейтроны практически всех энергий (их называют "всеволновыми" детекторами).

13.7.2 Методы измерений

Хотя измерение энергетического спектра нейтронов при пассивных методах анализа не является обязательным, оно иногда важно при проведении исследований и разработке приборов. Такие измерения трудны, но возможны с использованием различных методов измерений. Для этого используются спектрометры на протонах отдачи, нейтронные время-пролетные измерения и спектрометры, наполненные ^3He . Ниже приводится пример использования спектрометра, наполненного ^3He , для измерения энергетических спектров нейтронов.

Разработанный Шалевым и Катлером [23 и 24] спектрометр, наполненный ^3He , использовался для измерения энергетических спектров запаздывающих нейтронов. (Спектр нейтронов источника AmLi , приведенный на рис. 11.5, был также измерен с помощью аналогичного прибора). Спектрометр представляет собой пропорциональный счетчик, наполненный ^3He , аргоном и некоторым количеством метана. Регистрация нейтронов этим счетчиком основана на реакции $^3\text{He}(n,p)$ в диапазоне энергий от 20 кэВ до 2 МэВ. Сечение реакции в этом диапазоне энергий гладкое и почти плоское, уменьшающееся примерно от 10 до 1 барна. Для регистрации быстрых нейтронов счетчик не помещается в замедляющий нейтроны материал; для уменьшения вклада в отклик детектора тепловых нейтронов, сечение взаимодействия которых с ^3He равно 5330 барн, он защищается слоем кадмия или бора. Кроме того, для уменьшения влияния на энергетическое разрешение детектора наложений импульсов от гамма-квантов также используют защитные экраны из свинца. Собственная эффективность при этом низкая, порядка 0,1 %.

Энергетический спектр, полученный с помощью спектрометра, наполненного ^3He , имеет пик полного поглощения, соответствующий сумме энергий $E_n + 765$ кэВ; пик захвата тепловых нейтронов при энергии 765 кэВ; спектр, полученный при реакции упругого рассеяния $^3\text{He}(n,n')$ с максимумом при энергии, равной $0,75 E_n$ (по уравнению (13.3)). Для выделения пика $E_n + 765$ кэВ используется постоянная времени длительного сбора зарядов в диапазоне от 5 до 8 мкс. Это позволяет выделить более медленные сигналы от протонов отдачи, образующихся в (n,p) -реакции, на фоне более быстрых сигналов от отдачи ядер ^3He . Это также способствует одновременному накоплению информации о собранных зарядах и времени нарастания сигнала для обеспечения более эффективной дискриминации по форме импульса. Таким способом возможно получение энергетического спектра нейтронов, однако при его обработке необходимо очень аккуратно обращаться с результатами измерений.

ЛИТЕРАТУРА

1. Engineering Data Sheets 1.21 and 1.22 for BF_3 Proportional Counters (Reuter-Stokes, Inc., Cleveland, Ohio, 1979).
2. A.E. Evans, H.O. Menlove, R.B. Walton, and D.B. Smith, "Radiation Damage to ^3He Proportional Counter Tubes," *Nuclear Instruments and Methods* 133, (1976).
3. D.H. Wilkinson, *Ionization Chambers and Counters* (Cambridge University Press, Cambridge, Massachusetts, 1950).
4. P. Rice-Evans, *Spark, Streamer, Proportional, and Drift Chambers* (The Richelieu Press, London, 1974).
5. T.L. Atwell and H.O. Menlove, *Measurement of the Time Resolution of Several ^4He and CH_4 Proportional Counters* in "Nuclear Safeguards Research Program Status Report, September-December 1973," Los Alamos Scientific Laboratory report LA-7784-MS (July 1979), pp. 57-63.
6. T.D. Reily, "The Measurement of Leached Hulls", Los Alamos Scientific Laboratory Report LA-7784-MS (July 1979), pp. 57-63.
7. G.F. Knoll, *Radiation Detection and Measurement* (John Wiley & Sons, Inc., New York, 1979).
8. Engineering Data Sheets 1.02 and 1.03 for ^3He Proportional Counters (Reuter-Stokes, Inc., Cleveland, Ohio, 1978).
9. T.W. Crane, "Shielding for ^3He Detectors" in "Nuclear Safeguards Research Program Status Report, May-August 1976," Los Alamos Scientific Laboratory report La-6675-PR (January 1977), p. 3.
10. T.W. Crane, "Gas Mixture Evaluation for ^3He Neutron Detectors," in "Nuclear Safeguards Research and Development Program Status Report, May-August 1977," Los Alamos Scientific Laboratory report LA-7030-PR (March 1978), p. 39.
11. M.L. Evans, "NDA Technology for Uranium Resource Evaluation, January 1- June 30, 1978," Los Alamos Scientific Laboratory report LA-7617-PR (1979), pp. 36-41.
12. T. Gozani, *Active Nondestructive Assay of Nuclear Materials, Principles and Applications*, NUREG/CR-0602, SA1-MLM-2585 (US Nuclear Regulatory Commission, Washington, DC, 1981).

13. R.W. Lamphere, "Fission Detectors," in *Fast Neutron Physics*, I, J.B. Marion and J.L. Fowler, Eds. (Interscience Publishers, Inc., New York, 1960).
14. S. Kahn, R. Harman, and V. Forgue, *Nuclear Science and Engineering* 23, 8 (1965).
15. Engineering Data Sheet 1.41 for ^{10}B -Lined Proportional Counter (Reuter-Stokes Inc., Cleveland, Ohio, 1979).
16. R.L. Craun and D.L. Smith, "Analysis of Response Data for Several Organic Scintillators," *Nuclear Instruments and Methods* 80, 239 (1970).
17. L.M. Bollinger and G.E. Thomas, *Review of Scientific Instruments* 32, 1044 (1961).
18. D.W. Glasgow, D.E. Velkley, J.D. Brandenberger, and M.T. McEllistrem, "Pulse-Shape Discrimination for Wide Dynamic Range Neutron Scattering Experiments," *Nuclear Instruments and Methods* 114, 535 (1974).
19. C.L. Morris, J.E. Bolger, G.W. Hoffman, C.F. Moore, L.E. Smith, and H.A. Thiesen, "A Digital Technique for Neutron-Gamma Pulse Shape Discrimination," *Nuclear Instruments and Methods* 137, 397 (1976).
20. W.F. Hornyak, "A Fast Neutron Detector," *Review of Scientific Instruments* 23 (6), 264 (1952).
21. R.A. Harlan, "Uranium and Plutonium Assay of Crated Waste by Gamma-Ray, Single Neutron, and Slow Coincidence Counting," in Proc. American Nuclear Society Topical Conference on Measurement Technology for Safeguards and Materials Control, Kiawah Island, South Carolina, November 26-28, 1979 (National Bureau of Standards Publication 582, 1980), p.622.
22. L.E. Bruns, "Capability of Field Instrumentation to Measure Radionuclide Limits," Rockwell Hanford report RHO-LD-160 (1981), p.45.
23. S. Shalev and J.M. Cuttler, *Nuclear Science and Engineering* 51, 52 (1973).
24. H. Franz, W. Rudolph, H. Ohm, K.L. Kratz, G. Herrmann, F.M. Nuh, D.R. Slaughter, and S.G. Prussin, "Delayed-Neutron Spectroscopy with ^3He Spectrometers," *Nuclear Instruments and Methods* 144, 253 (1977).

Глава 14

Основы регистрации полного потока нейтронов

Дж. Стюарт
(Переводчик А. Н. Григорьев)

14.1 ВВЕДЕНИЕ

При измерении полного потока нейтронов регистрируются все импульсы, возникающие при взаимодействии нейтронов с чувствительным объемом детектора. При этом не предпринимается никаких попыток, чтобы выделить временную корреляцию событий, как это делается при регистрации нейтронных совпадений.

Простейшая система регистрации полного потока нейтронов состоит из устройств, схематически представленных на рис. 14.1. Все события, зарегистрированные детектором и образующие сигнал на выходе усилителя с амплитудой больше порогового значения, установленного интегральным дискриминатором, подсчитываются за заданный интервал времени пересчетным устройством. Обычно значение порога срабатывания дискриминатора достаточно высоко для того, чтобы отсекать импульсы с малой амплитудой от сопутствующего гамма-излучения, а также электромагнитных помех и шумов, и достаточно мало для того, чтобы зарегистрировать импульсы, вызванные нейтронами. Важно отметить, что спектры амплитуд импульсов пропорциональных счетчиков нейтронов ^3He и BF_3 не содержат информации об энергии регистрируемых нейтронов. Однако некоторая информация об этом может быть получена путем использования специальной конструкции замедляющих и поглощающих материалов, окружающих счетчики.

В этой главе представлены основные принципы применения регистрации полного потока нейтронов для пассивного анализа материалов, содержащих уран и плутоний. В качестве примера рассматриваются пропорциональные счетчики ^3He с предварительным замедлением нейтронов в полиэтилене. Такие детекторы обычно применяются в практике регистрации нейтронов на ядерных установках во всем мире.



Рис. 14.1. Основные компоненты простой системы регистрации полного потока нейтронов

14.1.1 Теория регистрации полного потока нейтронов

Скорость счета полного потока нейтронов определяется по простой формуле:

$$T = \epsilon M_L S, \quad (14.1)$$

где T — скорость счета полного потока нейтронов, имп./с;

ϵ — полная эффективность регистрации, имп./нейтрон;

M_L — умножение нейтронов утечки в образце, отн. ед.;

S — интенсивность первичного излучения нейтронов в образце, нейтрон/с.

Полная эффективность регистрации ϵ — это число импульсов, зарегистрированных детектором от одного нейтрона, излученного образцом. Умножение нейтронов утечки из образца M_L — это отношение числа нейтронов, излученных с внешней поверхности образца, к одному первичному нейтрону, рожденному внутри образца. Интенсивность нейтронного излучения в образце S — это количество первичных нейтронов, образованных за секунду в образце.

Построение этой главы основано на уравнении (14.1). Факторы, воздействующие на величины S , M_L и ϵ рассматриваются относительно влияния, которое они оказывают на методику пассивного анализа материалов.

14.1.2 Сравнение методов регистрации полного потока нейтронов и нейтронных совпадений

Перед изложением основных принципов регистрации полного потока нейтронов необходимо сравнить регистрацию полного потока нейтронов с регистрацией нейтронных совпадений, принципы которой подробно описаны в главе 16. Как правило, регистрация полного потока нейтронов относится ко *всем* нейтронам, испускаемым из образца, в то время как регистрация совпадений — только к нейтронам, коррелированным во времени.

Тремя основными источниками нейтронов для пассивного анализа материалов являются реакции (α, n) , спонтанное деление и вынужденное деление (см. главу 11 с подробным описанием механизмов образования нейтронов). В результате реакции (α, n) нейтроны образуются во времени случайным образом. При делении образуются "пачки", состоящие от 0 до 8 нейтронов. Схема совпадений может отделять нейтроны, образованные в процессе деления, от образованных при реакции (α, n) . Такая особенность позволяет обеспечить проведение пассивного анализа содержания изотопов плутония с высокими скоростями спонтанного деления (в основном это ^{240}Pu) на фоне значительного количества нейтронов от (α, n) -реакции и естественного нейтронного фона помещения. Кроме того, в активных методиках совпадений нейтронов применяются внешние источники нейтронов подсветки, например, из реакции (α, n) , чтобы индуцировать реакцию вынужденного деления в образце, результирующие нейтроны которой регистрируются с использованием электронной схемы совпадений. Схемы регистрации полного потока нейтронов и нейтронных совпадений различным образом реагируют на три источника образования нейтронов как при пассивном, так и при активном анализе. Это показано в табл. 14.1. Отметим, что в активном анализе вклад нейтронов спонтанного деления измеряемого образца может быть значительно снижен путем подбора интенсивного источника нейтронов (α, n) -реакции.

Таблица 14.1 – Чувствительность методик регистрации нейтронов к нейтронам от трех источников

Метод анализа	Регистрация полного потока нейтронов	Регистрация совпадений
Пассивный анализ	(α, n) , СД*, ВД**	СД, ВД
Активный анализ	(α, n) , СД, ВД	СД, ВД

* СД – нейтроны спонтанного деления.

** ВД – нейтроны вынужденного деления

Обычно, чем к меньшему числу источников нейтронов чувствительна методика, тем в большей степени она подходит для анализа определенных изотопов. Чем больше методика специфична к виду изотопов, тем более она полезна для анализа. Вообще пассивный метод регистрации полного потока нейтронов является наименее избирательным методом из представленных в табл. 14.1. Однако в тех случаях, когда преобладает только один из трех источников нейтронов, для анализа может быть применена пассивная регистрация полного потока нейтронов. Например, UF_6 , содержащий высокообогащенный уран, и PuF_4 являются материалами, в которых преобладают нейтроны (α, n) -реакции. Металлические образцы урана и плутония являются примерами, когда спонтанное деление представляет собой основной источник нейтронов. В каждом из этих примеров вынужденное деление может быть фактором, усложняющим анализ при регистрации как полного потока нейтронов, так и нейтронных совпадений. Так как вынужденные деления увеличивают средний выход нейтронов из образца, а отклик схем совпадений (например, сдвигового регистра, описанного в главе 16) увеличивается быстрее, чем средний поток нейтронов из образца, то регистрация полного потока нейтронов менее чувствительна к мешающему воздействию вынужденного деления.

Скорость счета совпадений пропорциональна ϵ^2 , в то время как скорость счета полного потока нейтронов пропорциональна ϵ . Изменения в матрице образца (например, наличие влаги) могут изменить среднюю энергию нейтронов, излучаемых из образца, и тем самым изменить эффективность детектора ϵ . Следовательно, регистрация нейтронных совпадений является более чувствительной к изменениям ϵ , чем регистрация полного потока нейтронов. Кроме того, результат регистрации полного потока нейтронов статистически намного точнее, чем результат регистрации совпадений за то же время измерения.

Недостатком метода регистрации полного потока нейтронов по сравнению с регистрацией совпадений является его чувствительность к фоновым нейтронам. Обычно фоновые нейтроны распределяются во времени случайно и легко отделяются схемой совпадений. Чтобы устранить это влияние используется отдельное измерение фона или применение специальной внешней защиты, либо совместно оба этих способа. Однако во многих случаях интенсивность фоновых нейтронов незначительна по сравнению с интенсивностью всех нейтронов из образца и эти дополнительные меры не обязательны.

На практике регистрация полного потока нейтронов и регистрация нейтронных совпадений часто применяются вместе для того, чтобы скорректировать ре-

зультаты измерений с учетом вынужденного деления (поправка на эффект саморазмножения).

Более подробное изложение этого вопроса можно найти в разделе 16.8.4 главы 16.

14.2 ИСТОЧНИКИ ОБРАЗОВАНИЯ ПЕРВИЧНЫХ НЕЙТРОНОВ

Первым из трех важных факторов, влияющих на регистрацию полного потока нейтронов, является образование первичных нейтронов в образце. Первичные нейтроны образуются в результате реакции (α, n) и спонтанного деления; вторичные нейтроны образуются в результате вынужденного деления. Вынужденное деление и поглощение нейтронов в образце рассматриваются обычно вместе и называются размножением нейтронов в образце. В главе 11 описываются физические процессы образования первичных нейтронов и даются значения выходов нейтронов из изотопов актинидов в результате спонтанного деления и реакции (α, n), представляющих интерес при пассивном нейтронном анализе. Значения выходов нейтронов (α, n)-реакции представлены для оксидов и фторидов.

В этом разделе рассматриваются те свойства процесса образования нейтронов в соединениях урана и плутония, которые влияют на результаты анализа, основанного на регистрации полного потока нейтронов. Излагаются общие принципы градуировки без рассмотрения эффектов размножения нейтронов. Другими словами, не учитываются образование нейтронов за счет вынужденного деления и потери нейтронов за счет поглощения. Эти вопросы рассматриваются в разделе 14.3.

14.2.1 Соединения плутония

При применении полного потока нейтронов в качестве характеристики одного или нескольких изотопов урана и плутония потребуются знание химической формы и изотопного состава образца. Мы постарались проиллюстрировать это на примерах. Рассмотрим образцы плутония массой 100 г в форме металла, PuO_2 и PuF_4 трех различных изотопных составов, представляющие топливо легководных реакторов низкой, средней и высокой глубины выгорания. В табл. 14.2 представлена интенсивность образования нейтронов для каждого изотопа, процесса образования нейтронов и формы образца. Эта интенсивность рассчитана на основе данных по выходу нейтронов из табл. 11.1 и 11.3 главы 11. Образование нейтронов при спонтанном делении зависит от изотопного состава образца, но не зависит от его химической формы. Образование же нейтронов при реакциях (α, n) зависит от того и другого. Выводы из результатов табл. 14.2 следующие:

1. Для металлического плутония, который не имеет (α, n)-компоненты, образование первичных нейтронов определяется изотопом ^{240}Pu (98, 96 и 65 % для трех изотопных составов плутония).

Таблица 14.2 – Интенсивность образования первичных нейтронов для трех изотопных составов плутония в металлическом плутонии, PuO₂ и PuF₄

Изотоп	Количество, вес. %	Интенсивность образования нейтронов для 100 г плутония, нейтрон/с		
		металл (спонтанное деление)	PuO ₂ ((α,n)-реакция)	PuF ₄ ((α,n)-реакция)
²³⁸ Pu	0,024	62	322	52800
²³⁹ Pu	89,667	2	3416	502135
²⁴⁰ Pu	9,645	9838	1360	202545
²⁴¹ Pu	0,556	0	1	95
²⁴² Pu	0,109	187	0	29
²⁴¹ Am	0,327*	0	880	144417
	ИТОГО:	10089	5979	902021
²³⁸ Pu	0,059	153	791	129800
²³⁹ Pu	82,077	2	3127	459631
²⁴⁰ Pu	16,297	16623	2298	342237
²⁴¹ Pu	1,231	0	2	209
²⁴² Pu	0,336	578	1	91
²⁴¹ Am	0,162*	0	436	71546
	ИТОГО:	17356	6655	1003514
²³⁸ Pu	1,574	4077	21092	3462800
²³⁹ Pu	57,342	1	2185	321115
²⁴⁰ Pu	24,980	25480	3522	524580
²⁴¹ Pu	10,560	0	14	1795
²⁴² Pu	5,545	9537	11	1497
²⁴¹ Am	1,159*	1	3118	511863
	ИТОГО:	39096	29942	4823650

* Весовое содержание изотопа ²⁴¹Am дано в процентах относительно плутония.

Полный поток нейтронов металлического плутония является характеристикой эффективной массы изотопа ²⁴⁰Pu (²⁴⁰Pu_{эфф}), где

$$^{240}\text{Pu}_{\text{эфф}} = 2,43(^{238}\text{Pu}) + ^{240}\text{Pu} + 1,69(^{242}\text{Pu}). \quad (14.2)$$

Коэффициенты 2,43 и 1,69 учитывают более высокое удельное (на грамм) образование нейтронов в изотопах ²³⁸Pu и ²⁴²Pu при спонтанном делении по отношению к ²⁴⁰Pu. (Уравнение (14.2) незначительно отличается от уравнения (16.1) (глава 16) для регистрации совпадений из-за различного распределения множественности нейтронов для четных изотопов плутония). Если изотопный состав плутония известен, полная масса плутония может быть выведена из определения

$^{240}\text{Pu}_{\text{эфф}}$, полученного при градуировке интенсивности счета полного потока нейтронов. Другими словами, принимая умножение равным 1,

$$T = \varepsilon \cdot S = k_0 \text{ } ^{240}\text{Pu}_{\text{эфф}} = k_1 \text{Pu}, \quad (14.3)$$

где k_0 и k_1 — эмпирические постоянные;
 $^{240}\text{Pu}_{\text{эфф}}$ и Pu — массы $^{240}\text{Pu}_{\text{эфф}}$ и плутония, соответственно.

2. Для PuO_2 отношение числа нейтронов, образованных в результате (α, n) -реакции, к числу нейтронов спонтанного деления составляет 0,59; 0,38 и 0,77 для трех выбранных изотопных составов плутония. В зависимости от состава материала изотопы ^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{240}Pu и ^{241}Am вносят значительный вклад в образование нейтронов при реакции (α, n) в PuO_2 . Полное образование потока нейтронов в PuO_2 описывается общим уравнением следующего вида:

$$S = a_1(^{238}\text{Pu}) + a_2(^{239}\text{Pu}) + a_3(^{240}\text{Pu}) + a_4(^{242}\text{Pu}) + a_5(^{241}\text{Am}), \quad (14.4)$$

где множители a_1 – a_5 — удельные интенсивности образования нейтронов в PuO_2 как для спонтанного деления, так и (α, n) -реакции, а величины в скобках являются массами изотопов плутония. Множители определяются для каждого изотопа на основе выхода нейтронов (α, n) -реакции и спонтанного деления. Если они известны, то полная масса плутония может быть определена из формулы

$$T = \varepsilon \cdot S = k_2 \text{Pu}, \quad (14.5)$$

где k_2 — эмпирическая постоянная;
 Pu — масса плутония.

Напомним, что уравнение (14.5) не предполагает эффектов размножения ($M_L = 1$).

3. Для PuF_4 в (α, n) -реакциях для всех трех изотопных составов образуется более чем 98 % нейтронов. Как правило, образование нейтронов в PuF_4 описывается уравнением, похожим на уравнение (14.4):

$$S = a_6(^{238}\text{Pu}) + a_7(^{239}\text{Pu}) + a_8(^{240}\text{Pu}) + a_9(^{241}\text{Am}). \quad (14.6)$$

Множители a_6 – a_9 являются удельными интенсивностями образования нейтронов для PuF_4 в (α, n) -реакциях при небольших количествах компонентов от спонтанного деления. Как и в случае с PuO_2 , если изотопы плутония известны, полная масса плутония может быть определена путем регистрации полного потока нейтронов из PuF_4 , применяя простую (без учета размножения) формулу:

$$T = \varepsilon \cdot S = k_3 \text{Pu}. \quad (14.7)$$

Как и ранее, постоянная k_3 должна быть определена эмпирически.

Для примеров, представленных в табл. 14.2, значения для изотопа ^{241}Am были взяты во время проведения анализа. ^{241}Am является дочерним изотопом ^{241}Pu . Содержание ^{241}Am увеличивается со временем, так как период его полураспада превышает период полураспада ^{241}Pu . Для расчета концентрации ^{241}Am в некоторый момент времени t при известных первоначальных концентрациях ^{241}Pu и ^{241}Am к моменту $t = 0$ используется уравнение (21.11) главы 21.

14.2.2 Соединения урана

Так же как и для соединений плутония, для анализа соединений урана методом регистрации полного потока нейтронов необходимы предварительные знания о химической форме и изотопном составе. Интенсивности первичных нейтронов в образцах урана в зависимости от химической формы и изотопного состава, которые часто встречаются в ядерном топливном цикле, приведены в табл. 14.3 и 14.4. Рассмотрены образцы урана массой 10 кг в виде металла, UO_2 , UO_2F_2 и UF_6 . В табл. 14.3 представлены данные по низкообогащенному урану (НОУ) с обогащением по ^{235}U : 0,2; 0,7; 3,0 и 18,2 % (первое и второе значения — это обедненный и природный уран, соответственно, — прим. ред). В табл. 14.4 представлены данные по высокообогащенному урану (ВОУ) с обогащением по ^{235}U : 31,7; 57,4; 69,6 и 97,6 %. Интенсивности нейтронов при спонтанном делении и (α, n) -реакциях для каждого обогащения определяются изотопным составом и химической формой. Эти интенсивности рассчитаны на основе данных по выходу нейтронов из табл. 11.1 и 11.3 главы 11 и работы [1] (UO_2F_2). Общие выводы по таблицам следующие:

1. Спонтанное деление ^{238}U является доминирующим фактором при образовании нейтронов в металлическом уране с обогащением по изотопу ^{235}U ниже 70 %. Этот факт позволяет анализировать ^{238}U в крупных образцах металлического урана методом регистрации полного потока нейтронов во всех случаях за исключением высокого обогащения по ^{235}U . Однако при анализе урана для приемлемой статистической точности требуются более продолжительное время измерения и более крупные образцы из-за низкой интенсивности нейтронов по сравнению с металлическим плутонием. Линейная зависимость интенсивности полного потока нейтронов от массы ^{238}U в сочетании с обогащением ^{235}U используется для определения полного количества металлического урана в низкообогащенном материале (см. раздел 15.4.1 главы 15). Эта зависимость имеет вид

$$T = \epsilon \cdot S = k_4 \cdot ^{238}U = k_5 U, \quad (14.8)$$

где k_4 и k_5 — эмпирические постоянные.

2. Для UO_2 полное образование нейтронов (спонтанное деление плюс (α, n) -реакция) является приблизительно постоянным для обогащения менее 60 %. С ростом обогащения составляющая спонтанного деления уменьшается по мере увеличения составляющей реакции (α, n) . При обогащении более 60 % составляющая реакции (α, n) быстро растет. Альфа-распад ^{234}U является преобладающим источником реакций (α, n) в UO_2 с обогащением 3 % или выше. Полный поток нейтронов в UO_2 в общем виде описывается формулой

$$S = b_1(^{234}U) + b_2(^{235}U) + b_3(^{238}U), \quad (14.9)$$

где b_1 – b_3 — удельные интенсивности образования нейтронов как для спонтанного деления, так и реакций (α, n) в UO_2 , а величины в скобках представляют массы изотопов урана. Они рассчитываются из известного изотопного состава и удельного нейтронного выхода для каждого процесса. Если они известны, тогда используется линейная градуировка по формуле

$$T = \epsilon \cdot S = k_6 U, \quad (14.10)$$

где k_6 — эмпирическая постоянная;

U — масса урана.

Анализ UO_2 , являющегося самой распространенной формой, в которой находится уран в ядерном топливном цикле (контейнеры, стержни, топливные сборки и т.п.), проводится преимущественно не пассивными, а активными нейтронными методами, так как при пассивных измерениях относительно низкие интенсивности полного потока нейтронов для образцов урана стандартных размеров сравнимы с окружающим нейтронным фоном. В активных методах нейтроны вынужденного деления ^{235}U регистрируются приборами счета совпадений. Однако крупные образцы UO_2 могут анализироваться путем пассивной регистрации полного потока нейтронов в зависимости от характеристик образца и целей измерений.

Таблица 14.3 – Интенсивности источников первичных нейтронов в металлическом уране, UO_2 , UO_2F_2 и UF_6 для четырех изотопных составов низкообогащенного урана (НОУ)

Изотоп	Количество, вес.%	Интенсивность образования нейтронов для образца урана массой 10 кг, нейтрон/с			
		металл (спонтанное деление)	UO_2 ((α ,n)-реакция)	UO_2F_2 ((α ,n)-реакция)	UF_6 ((α ,n)-реакция)
^{234}U	0,0005	0	0	9	29
^{235}U	0,1977	0	0	1	2
^{236}U	0,0036	0	0	0	1
^{238}U	99,8	136	1	175	279
	ИТОГО:	136	1	185	311
^{234}U	0,0049	0	1	90	284
^{235}U	0,7108	0	0	3	6
^{236}U	-	-	-	-	-
^{238}U	99,28	135	1	174	278
	ИТОГО:	135	2	267	568
^{234}U	0,0244	0	7	449	1415
^{235}U	3,001	0	0	11	24
^{236}U	0,0184	0	0	2	5
^{238}U	96,96	132	1	170	271
	ИТОГО:	132	8	632	1715
^{234}U	0,0865	0	26	1592	5017
^{235}U	18,15	1	1	65	145
^{236}U	0,2313	0	1	28	67
^{238}U	96,96	111	1	143	228
	ИТОГО:	112	29	1828	5457

3. Для UO_2F_2 (продукт химической реакции UF_6 и воды) образование нейтронов определяется преимущественно (α, n) -реакцией. Интенсивность образования нейтронов увеличивается с обогащением по ^{235}U . Это происходит потому, что в процессах разделения изотопов, основанных на различии масс, ^{234}U обогащается вместе с ^{235}U . Уравнения, аналогичные уравнениям (14.9) и (14.10), описывают градуировку пассивной регистрации полного потока нейтронов из UO_2F_2 с известным изотопным составом. Пассивная регистрация полного потока нейтронов применялась для определения количества отложений UO_2F_2 внутри технологического оборудования на газодиффузионных заводах [2].

Таблица 14.4 – Интенсивности источников первичных нейтронов в металлическом уране, UO_2 , UO_2F_2 и UF_6 для четырех изотопных составов высокообогащенного урана (ВОУ)

Изотоп	Количество, вес.%	Интенсивность образования нейтронов для образца урана массой 10 кг, нейтрон/с			
		металл (спонтанное деление)	UO_2 ((α, n) -реакция)	UO_2F_2 ((α, n) -реакция)	UF_6 ((α, n) -реакция)
^{234}U	0,1404	0	42	2583	8143
^{235}U	31,71	1	2	114	254
^{236}U	0,3506	0	1	42	102
^{238}U	67,80	<u>92</u>	<u>1</u>	<u>119</u>	<u>190</u>
	ИТОГО:	93	46	2858	8689
^{234}U	0,2632	0	79	4842	15265
^{235}U	57,38	2	4	207	459
^{236}U	0,5010	0	1	60	145
^{238}U	41,86	<u>57</u>	<u>0</u>	<u>73</u>	<u>117</u>
	ИТОГО:	59	84	5184	15986
^{234}U	0,3338	0	100	6142	19360
^{235}U	69,58	2	5	250	557
^{236}U	0,5358	0	1	64	155
^{238}U	29,55	<u>40</u>	<u>0</u>	<u>52</u>	<u>83</u>
	ИТОГО:	42	106	6508	20155
^{234}U	1,032	1	310	18989	59856
^{235}U	97,65	3	7	352	781
^{236}U	0,2523	0	1	30	73
^{238}U	1,07	<u>1</u>	<u>0</u>	<u>2</u>	<u>3</u>
	ИТОГО:	5	318	19373	60713

4. Для UF_6 (стандартный технологический материал при обогащении урана) в качестве источника нейтронов доминирует реакция $^{19}F(\alpha, n)^{22}Na$ в результате альфа-распада ^{234}U . Этот материал похож на UO_2F_2 , при этом из-за дополнительного фтора преобладает реакция (α, n) . Для произвольного значения обогащения образование полного потока нейтронов в UF_6 также определяется уравнением, аналогичным (14.9). Последующая градуировка проводится по уравнениям типа (14.10).

Пассивная регистрация полного потока нейтронов может применяться для подтверждающих измерений баллонов с UF_6 любых размеров. Обычно этот быстрый, простой и недорогой метод применяется для баллонов, содержащих низкообогащенный UF_6 . Небольшие баллоны измеряются в 4π -геометрии («колодезные» счетчики). Измерения крупных баллонов осуществляются портативными счетчиками, такими как SNAP (см. раздел 15.2 главы 15). Для крупных баллонов с низкообогащенным ураном градуировочные характеристики получаются более

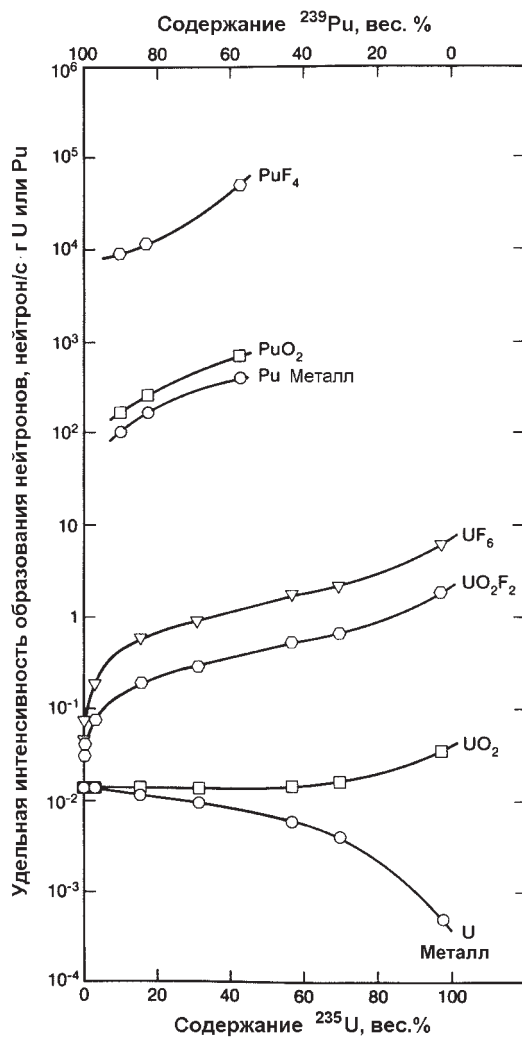


Рис. 14.2. Удельные интенсивности образования нейтронов для металлического урана и плутония, их оксидов и фторидов. Данные взяты из табл. 14.2–14.4

простые, чем в уравнениях (14.9) и (14.10), предполагая постоянными величину весового содержания изотопа ^{238}U и отношение ^{235}U к ^{234}U (см. раздел 15.2.2 главы 15). Данные табл. 14.2–14.4 приведены на графике рис. 14.2. Здесь сравниваются интенсивности нейтронного излучения при спонтанном делении и реакции (α, n) для металлического плутония, PuO_2 , PuF_4 , металлического урана, UO_2 , UO_2F_2 и UF_6 . Удельные (на грамм урана или плутония) интенсивности перекрывают восемь порядков значений, начиная от металлического урана до PuF_4 . Интенсивности показаны на графике как функции весового содержания ^{235}U и ^{239}Pu . График полезен для визуального сравнения и оценки статистики измерений в экспериментах с известными детекторами и геометрией.

14.2.3 Примеси

Соединения плутония и урана в ядерном топливном цикле очень редко встречаются полностью свободными от примесей, которые могут значительно искажать образование первичных нейтронов. В качестве примера рассмотрим PuO_2 с примесями воды. Обычно вода встречается в PuO_2 с номинальным содержанием 1 вес.%. В табл. 14.2 представлена интенсивность образования нейтронов при реакции (α, n) в сухом PuO_2 для трех изотопных составов плутония из топлива легководного реактора с низкой, средней и высокой глубиной выгорания. Первый образец содержит приблизительно 10 % изотопа ^{240}Pu от массы плутония. Второй — приблизительно 16 % ^{240}Pu и третий — приблизительно 25 % ^{240}Pu . На рис. 14.3 показана зависимость интенсивности $S(\alpha, n)$ образования нейтронов (α, n) -реакции от весового содержания воды для трех изотопных составов плутония. Значение $S(\alpha, n)$ для материала с 25 % изотопа ^{240}Pu приблизительно в 5 раз больше, чем для материалов с 16 и 10 % ^{240}Pu (из-за высокого содержания ^{238}Pu), независимо от содержания влаги. На рис. 14.4 показаны значения $S(\alpha, n)$ для влажного PuO_2 по сравнению с сухим оксидом в зависимости от содержания H_2O . Полезно отметить, что воздействие влаги не зависит от изотопного состава плутония. То есть, примесь влаги в 1 % производит одинаковые изменения в $S(\alpha, n)$ при содержании 10, 16 и 25 % изотопа ^{240}Pu , а именно +4,4 %. Это указывает на то, что небольшое изменение первоначальной энергии альфа-частиц в результате изменений изотопного состава плутония незначительно влияет на образование нейтронов во влажном PuO_2 .

Хотя в PuO_2 встречаются следы многих примесей, наиболее важным воздействием фактором является фтор, влияющий на изменение $S(\alpha, n)$. На рис. 14.5 приведена зависимость $S(\alpha, n)$ от примеси фтора в PuO_2 (16 % ^{240}Pu) с содержанием 1 и 9 вес. % воды. На рис. 14.6 показаны значения $S(\alpha, n)$ для PuO_2 (16 % ^{240}Pu) с примесями фтора по отношению к чистому PuO_2 как функция концентрации фтора. Показаны случаи с влажностью 1 и 9 вес. %. Это *относительное* изменение $S(\alpha, n)$ в зависимости от примеси фтора больше для сухого, чем для влажного PuO_2 .

Вода и примеси фтора влияют на образование нейтронов в (α, n) -реакции, но не влияют на образование нейтронов при спонтанном делении. Если содержание воды и фтора известны, то данные на рис. 14.3–14.6 могут быть использованы для корректировки параметров градуировки при анализе методом регистрации полного потока нейтронов. Эти данные были рассчитаны, используя Лос-Аламосскую программу SOURCES [3, 4]. В работе [5] содержатся результаты расчетов

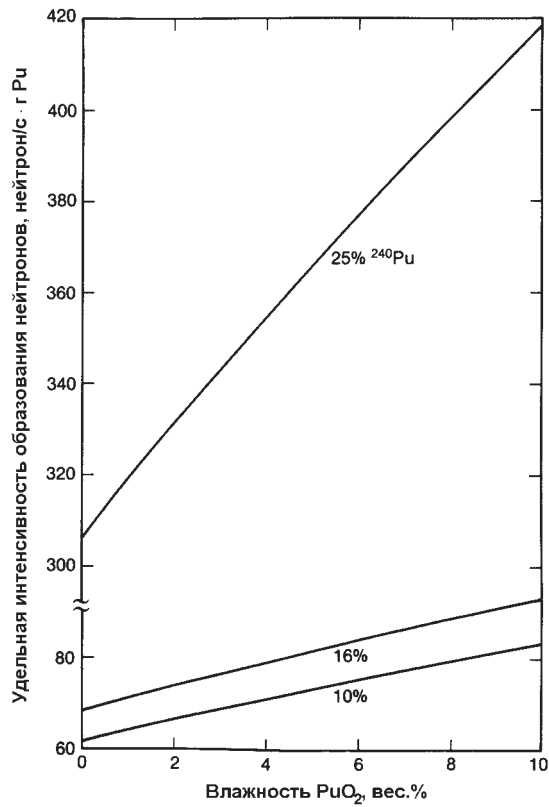


Рис. 14.3. Удельные интенсивности образования нейтронов в (α, n) -реакциях в PuO_2 в зависимости от количества влаги для содержаний ^{240}Pu 10, 16 и 25 %

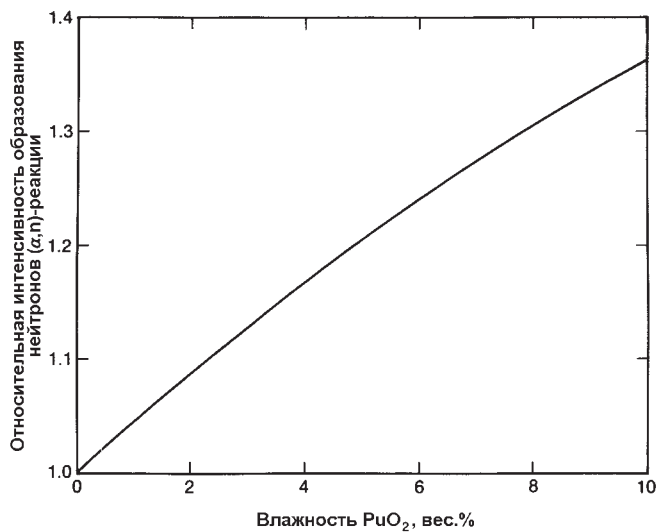


Рис. 14.4. Зависимость образования нейтронов при (α, n) -реакциях во влажном PuO_2 по отношению к сухому PuO_2 от количества влаги. Данные для изотопных составов 10, 16 и 25 % ^{240}Pu ложатся на одну кривую

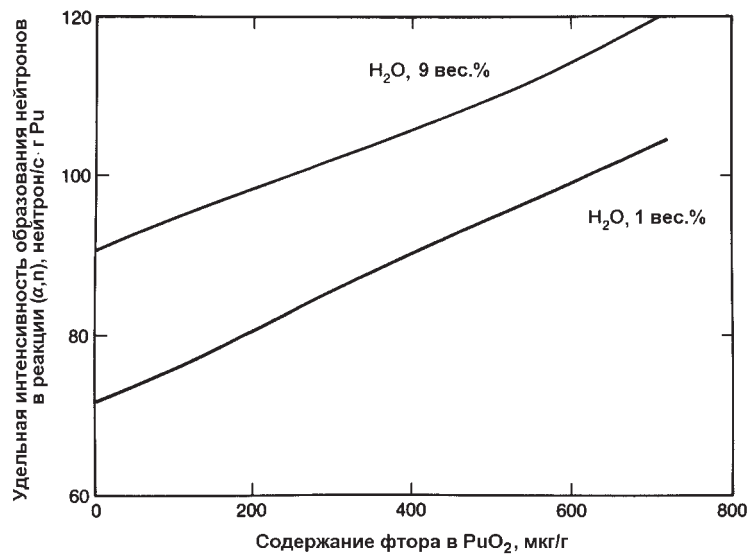


Рис. 14.5. Удельная интенсивность образования нейтронов в (α, n) -реакциях в PuO_2 в зависимости от количества примесей фтора для изотопного состава с 10% ^{240}Pu . Показаны случаи с 1 и 9 вес.% воды

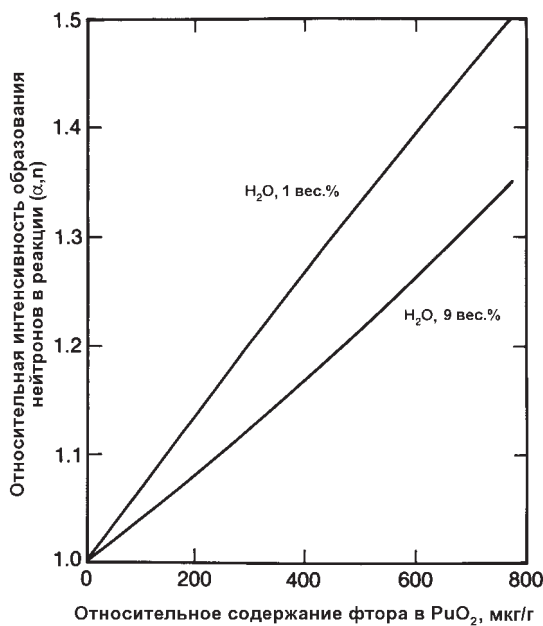


Рис. 14.6. Отношение интенсивности образования нейтронов в (α, n) -реакциях в PuO_2 с примесями фтора по отношению к чистому PuO_2 в зависимости от концентрации фтора для 16% ^{240}Pu . Показаны случаи с 1 и 9 вес.% воды

воздействия следовых количеств некоторых примесей с низким атомным номером Z на величину $S(\alpha, n)$ для металлического плутония. В разделе 11.4 главы 11 представлены приблизительные формулы для расчета влияния на $S(\alpha, n)$ примесей в оксидах урана и плутония.

14.2.4 Эффекты влияния энергетического спектра нейтронов

Нейтроны образуются при спонтанном делении и (α, n) -реакциях с характерными распределениями по энергии или энергетическими спектрами. Эти спектры важны при конструировании детекторов полного потока нейтронов с применением счетчиков на основе ^3He с полиэтиленовым замедлителем нейтронов. Для соединений плутония спектр спонтанного деления незначительно зависит от изотопного состава плутония и не зависит от химического состава образца. Вид спектра при спонтанном делении определяется ядерной кинетикой процесса распада, который немного отличается для изотопов ^{238}Pu , ^{240}Pu и ^{242}Pu . На рис. 14.7 представлен график спектра удельного образования нейтронов при спонтанном делении для плутония с 16 % ^{240}Pu . Спектр изотопа ^{240}Pu хорошо описывается формулой Уатта [3]:

$$N(E) \propto e^{-E/A} \text{sh}(\sqrt{BE}), \quad (14.11)$$

где E — энергия нейтронов в лабораторной системе координат;

$$A = 0,795;$$

$$B = 4,69.$$

Энергетический спектр нейтронов, образующихся при (α, n) -реакциях в соединениях плутония зависит от химического состава образца, уровня примесей и незначительно зависит от изотопного состава плутония. Состав образца определяет снижение энергии альфа-частиц и зависимость сечения (α, n) -реакции от их энергии. На рис. 14.8 приведены четыре спектра удельного выхода нейтронов, образованных в реакции (α, n) для PuO_2 (16 % ^{240}Pu) с различной влажностью и при-

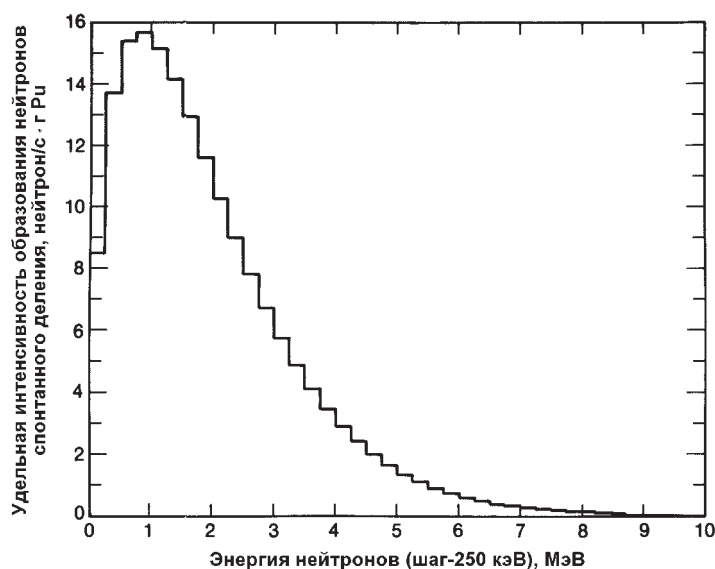


Рис. 14.7. Спектр образующихся нейтронов спонтанного деления для Pu с содержанием изотопа ^{240}Pu 16 %

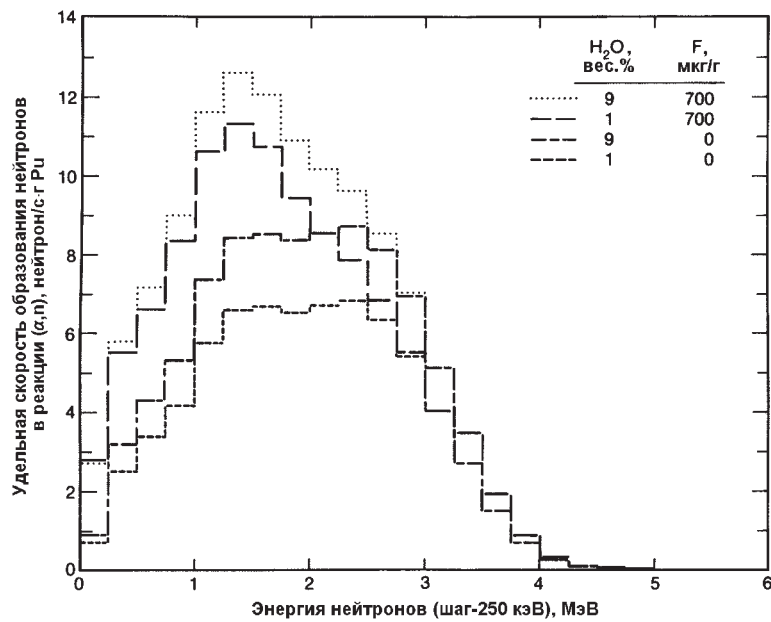


Рис. 14.8. Спектры образующихся нейтронов в реакции (α, n) для PuO_2 (16 % ^{240}Pu) с переменной влажностью и содержанием фтора (из расчетов по программе SOURCES [3])

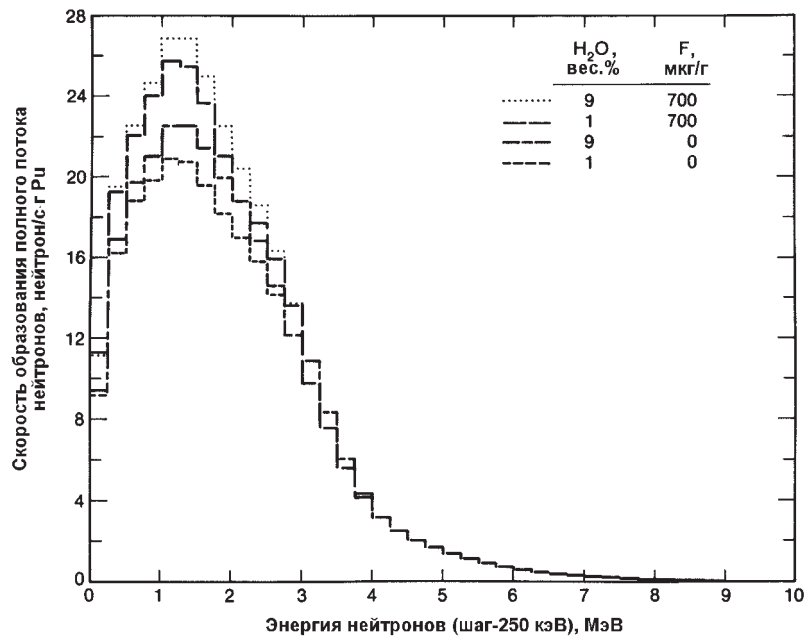


Рис. 14.9. Спектр образования полного потока нейтронов в PuO_2 (16 % ^{240}Pu) с переменной влажностью и содержанием фтора (из расчета по программе SOURCES [3])

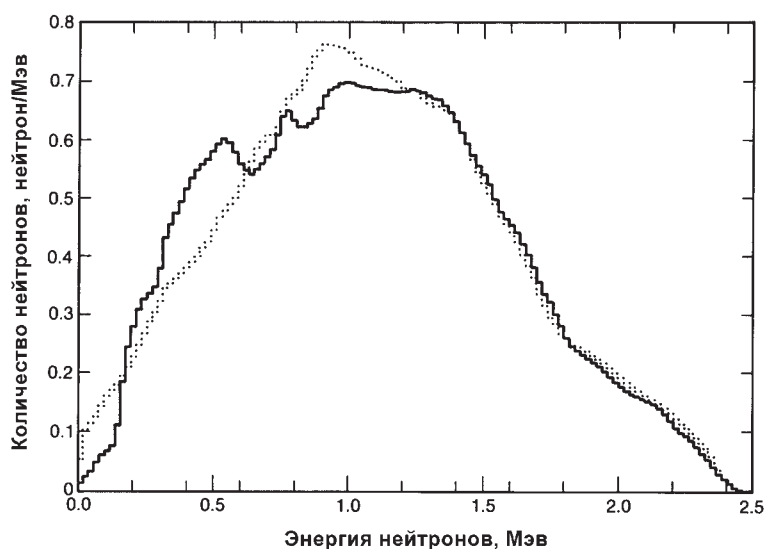


Рис. 14.10. Нормированный спектр образования нейтронов реакции (α, n) в $^{234}\text{UF}_6$ (из расчета по программе SOURCES [3]) с моделями двух уровней ветвления в ^{22}Na

месями фтора. Увеличение влажности незначительно "ужесточает" спектр, а увеличение содержания фтора "смягчает" его. На рис. 14.9 показаны четыре спектра полного потока нейтронов, соответствующие концентрациям влаги и фтора, указанным на рис. 14.8. Средние энергии этих четырех спектров по существу не отличаются. Это сходство указывает на то, что отличия в форме спектра, как правило, не являются основными факторами, влияющими на интенсивность полного потока нейтронов в PuO_2 при уровнях влажности и примесей фтора в исследуемых диапазонах, типичных для множества образцов PuO_2 .

На рис. 14.10 приведены нормированные спектры образования нейтронов при (α, n) -реакциях в $^{234}\text{UF}_6$. Показаны спектры для двух схем уровней ветвления ^{22}Na . Спектр нейтронов (α, n) -реакции для $^{234}\text{UF}_6$ мягче, чем для PuO_2 , и имеет среднюю энергию приблизительно 1,2 МэВ, тогда как для PuO_2 средняя энергия составляет приблизительно 2,0 МэВ.

14.2.5 Эффекты тонкой мишени

В предыдущих разделах предполагалось, что первичные нейтроны при реакциях (α, n) образуются в образцах, которые определяются как "толстые" мишени. Толстыми мишенями являются материалы, в которых альфа-частицы теряют всю свою энергию в объеме образца. Если плотность и размеры образца достаточно малы, образование нейтронов снижается, так как некоторые альфа-частицы вылетают из образца до того, как они вступят в (α, n) -реакцию с изотопами мишени. Ситуацией с "тонкой" мишенью является образование нейтронов в газообразном UF_6 альфа-частицами от ^{234}U по реакции $^{19}\text{F}(\alpha, n)^{22}\text{Na}$. В этом случае альфа-частицы могут выйти из объема газа при энергии выше порогового сечения реакции $^{19}\text{F}(\alpha, n)$. В работе [6] представлены методы расчета образования нейтронов в тон-

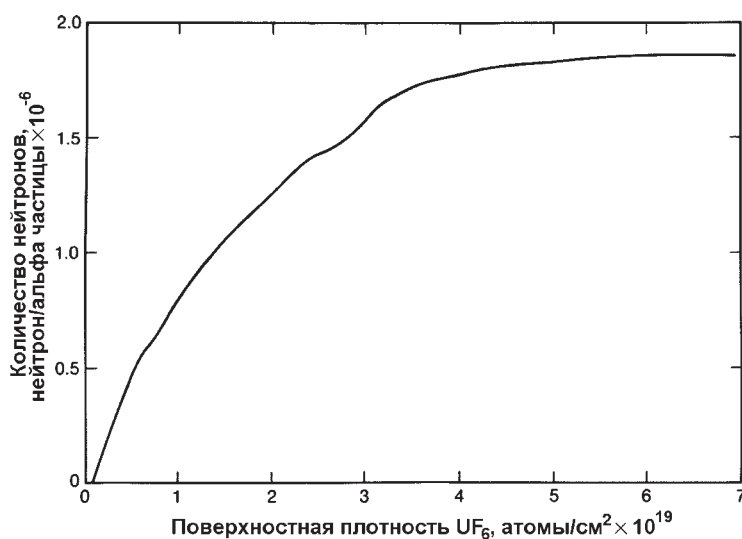


Рис. 14.11. Зависимость количества нейтронов, образованных альфа-частицей с энергией 4,77 МэВ при распаде ^{234}U , от поверхностной плотности UF_6 . Толщина мишени в см может быть получена путем деления абсциссы на плотность атомов UF_6 (атомы/см 3)

кой газовой мишени UF_6 . Рис. 14.11 [6] показывает образование нейтронов в UF_6 как функцию поверхностной плотности, равной произведению плотности атомов и толщины мишени. В толстой мишени из $^{234}\text{UF}_6$ образование нейтронов насыщается приблизительно при поверхностной плотности 6×10^{19} атомов/см 2 . При поверхностной плотности приблизительно $1,3 \times 10^{19}$ атомов/см 2 число нейтронов, образованных α -частицей, составляет примерно половину от числа нейтронов для толстой мишени.

14.3 ПЕРЕНОС НЕЙТРОНОВ В ОБРАЗЦЕ

После определений образования первичных нейтронов в образце и отношения их количества к массе урана или плутония, следующим логическим шагом при использовании пассивной регистрации полного потока нейтронов для анализа является определение количества нейтронов, которые вылетают из образца, отнесенного к одному образованному нейтрону. Описание переноса нейтронов в объеме образца (включая все процессы образования и потери нейтронов) является сложным и требует для получения лучших результатов применения расчетов методом Монте-Карло на больших компьютерах. В главе 12 описываются многие из основных принципов переноса нейтронов. Здесь мы представляем простую формулу для оценки умножения нейтронов утечки в образце, обсуждаем численные результаты и рассматриваем применение этой формулы.

14.3.1 Умножение нейтронов утечки

Число нейтронов, вылетающих из образца (и, следовательно, пригодных для регистрации), отнесенное к одному образованному первичному нейтрону называется умножением нейтронов утечки в образце M_L . Величина M_L отличается от полного умножения M , определенного в главе 12. Величина M — это количество нейтронов, *рожденных* в образце (от первичного источника, вынужденных делений, реакций $(n,2n)$ и других событий), отнесенное к одному образованному первичному нейтрону. Величина M_L учитывает *рождение нейтронов и их потери* при делении и паразитических реакциях захвата. Следовательно, M_L имеет большее отношение к регистрации полного потока нейтронов, чем M . Эти две величины, как показано ниже, близко связаны.

Используются следующие определения:

- ν — среднее число нейтронов, рожденных в одном акте вынужденного деления;
- p — вероятность того, что нейтрон вызовет деление;
- p_c — вероятность того, что нейтрон будет захвачен;
- p_L — вероятность того, что нейтрон вылетит из образца (вероятность утечки).

Нейтрон данного поколения может вызвать деление с вероятностью p и исчезнуть с вероятностью $1 - p$. Другими словами,

$$p + p_c + p_L = 1. \quad (14.12)$$

Кроме того, число делений, произведенных в данном поколении, отнесенное к числу делений в предыдущем поколении, равно $p\nu$. Величина $p\nu$ — это коэффициент размножения k из физики реакторов, рассмотренный в главе 12. При вынужденном делении нейтрон поглощается. Поэтому чистая *прибыль* нейтронов в результате вынужденного деления, отнесенная к делению, составляет $\nu - 1$.

Рассмотрим образец, в котором для нейтрона единственными возможностями являются вынужденное деление, захват нейтрона или его выход из образца. В нулевом поколении один нейтрон образуется в результате спонтанного деления или (α, n) -реакции. В первом поколении существуют p делений и $p\nu$ новых нейтронов, создающих чистую прибыль нейтронов $p(\nu - 1)$. Во втором поколении существуют $p^2\nu$ делений, $(p\nu)^2$ новых нейтронов и чистая прибыль нейтронов $p^2\nu(\nu - 1)$. Этот процесс размножения показан в табл. 14.5 для нескольких первых поколений нейтронов. Для всех поколений сумма общего числа нейтронов в образце, образованных одним первичным нейтроном, составляет полное умножение M :

$$M = \frac{1}{1 - p\nu} = \frac{1}{1 - k}; k < 1. \quad (14.13)$$

Для всех поколений сумма чистой прибыли нейтронов — это полная чистая прибыль нейтронов, отнесенная к одному первичному нейтрону, $(1 - p)/(1 - p\nu)$. Не все нейтроны чистой прибыли покидают образец — некоторые будут поглощены. Умножение нейтронов утечки M_L является полной чистой прибылью нейтронов от одного первичного нейтрона, умноженной на вероятность исчезновения, то есть:

$$M_L = \left(\frac{1-p}{1-pv} \right) \left(\frac{p_L}{p_L + p_c} \right) = \frac{p_L}{1-pv} = \frac{1-p-p_c}{1-pv}. \quad (14.14)$$

В итоге, из уравнений (14.13) и (14.14) соотношение между M_L и M составляет:

$$M_L = p_L M. \quad (14.15)$$

Если вероятность захвата p_c невелика, то

$$M_L \approx (1-p) M = \frac{1-p}{1-pv}. \quad (14.16)$$

Таблица 14.5 – Процесс размножения нейтронов для четырех поколений деления

Поколение	Число делений	Созданные нейтроны	Чистая прибыль нейтронов
0	—	1(источник)	1
1	p	pv	$p(v-1)$
2	$p(pv)$	$(pv)^2$	$p(pv)(v-1)$
3	$p(pv)^2$	$(pv)^3$	$p(pv)^2(v-1)$
4	$p(pv)^3$	$(pv)^4$	$p(pv)^3(v-1)$

Если значения p_c и p малы, то M_L и M имеют приблизительно одно и то же значение. Величина M всегда больше или равна M_L . Уравнение (14.4), определяющее M_L , зависит от трех параметров: v , p и p_c . Эти величины зависят от энергии нейтрона, вызывающего деление, или захваченного нейтрона. Поэтому предполагается, что они представляют средние значения для спектра замедления нейтрона в образце. Все три параметра зависят от состава образца и плотности. Вероятности p и p_c зависят также и от геометрии образца. Предполагается, что эффекты размножения, вызванного нейтронами, отраженными счетчиком обратно в образец, должны быть включены в p и p_c . Отражение понижает энергию нейтронов и увеличивает как p , так и p_c .

На рис. 14.12 показаны графики умножения нейтронов утечки M_L как функции вероятности деления p . Для создания графиков использовалось уравнение (14.16). Представлены две группы кривых. Нижняя группа трех кривых описывает урансодержащие образцы с $v = 2,5$. Верхняя группа трех кривых с $v = 3,0$ описывает образцы, содержащие плутоний. В каждой группе кривых вероятность захвата p_c меняется от 0 до 0,02, т.е. охватывает широкий диапазон образцов.

На рис. 14.13 показаны графики полного умножения и умножения утечки нейтронов в зависимости от массы PuO_2 в цилиндрическом объеме с диаметром 8,35 см. Эффективная масса изотопа ^{240}Pu составляла 10 % от веса плутония. PuO_2 имел плотность 1,3 г/см³ и содержал 1 % воды. Высота образца увеличивалась по мере увеличения массы PuO_2 . Значение умножения нейтронов утечки рассчитано с использованием программы расчета переноса методом Монте-Карло

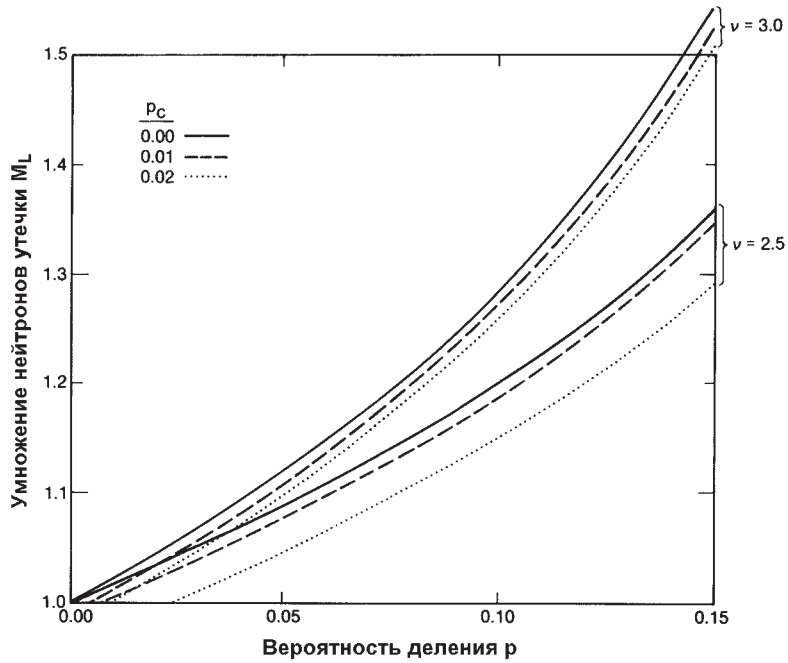


Рис. 14.12. Зависимость умножения нейтронов утечки M_L от вероятности деления для двух значений средней множественности нейтронов и трех значений вероятности захвата

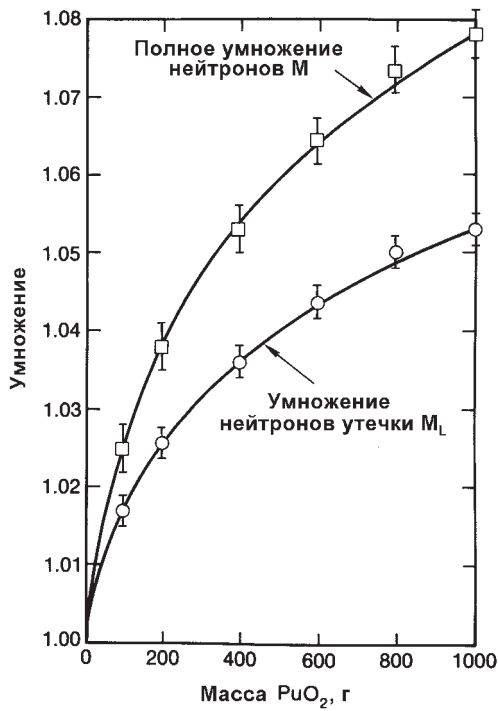


Рис. 14.13. Зависимости умножения нейтронов утечки M_L и полного умножения M от массы PuO_2 в контейнере с внутренним диаметром 8,35 см. Плутоний содержит 10% $^{240}\text{Pu}_{\text{эфф}}$. Образец PuO_2 имеет плотность 1,3 г/см³ и 1 вес. % воды. Высота заполнения увеличивается по мере увеличения массы

MCNP [7]. Значения полного коэффициента умножения M рассчитаны из значений коэффициента умножения нейтронов утечки M_L , используя соотношение

$$M = \frac{\nu M_L - 1}{\nu - 1}, \quad (14.17)$$

где $\nu = 3,13$. Это выражение может быть получено путем комбинации уравнений (14.13) и (14.16). Для образцов, рассмотренных на рис. 14.13, вероятность захвата p_c незначительна. На графиках ясно видна разница между полным коэффициентом умножения M и коэффициентом умножения нейтронов утечки M_L . В работе [8] содержится дополнительная информация по расчетам M_L с помощью программы MCNP и информация по корректировке множественности совпадений на эффект размножения.

14.3.2 Спектр нейтронов утечки

Нейтроны, покидающие образец, имеют меньшую среднюю энергию по сравнению с первичными нейтронами, образованными при спонтанном делении или в реакциях (α, n) . Нейтроны теряют энергию в образце из-за упругих столкновений с легкими ядрами или неупругих столкновений с тяжелыми ядрами. Контейнер, в котором находится образец, может также влиять на спектр утечки нейтронов. Как правило, он не является главным фактором. Если нет мешающих материалов, энергетический спектр регистрируемых детектором нейтронов представляет собой спектр нейтронов, выходящих из контейнера с делящимся материалом. Форма этого спектра может иметь значение при определении эффективности регистрации, как это описано в разделе 14.4.

Пример потери энергии нейтронов в образце, рассчитанный методом Монте-Карло по программе MCN [9], показан на рис. 14.14. Здесь приведен спектр нейтронов утечки из баллона с UF_6 массой 2273 кг, в котором обогащение по ^{235}U составляет 2,5 % [10]. Для расчетов предполагалось равномерное пространственное распределение нейтронов с энергией 1 МэВ, потому что энергетический спектр для толстой мишени $^{19}F(\alpha, n)^{22}Na$ (см. рис. 14.10) в то время не был хорошо известен. На рис. 14.14 показано, что замедление нейтронов в большом баллоне с UF_6 весьма значительно. Средняя энергия нейтронов утечки составляет 0,44 МэВ по сравнению со средней энергией первичного нейтрона 1,0 МэВ. Следует также отметить, что около 20 % первичных нейтронов не выходят из баллона из-за эффектов захвата нейтронов.

Другой пример расчета спектра нейтронов утечки, выполненный по программе MCNP [7], показан на рис. 14.15. Моделируемый образец представлял собой 800 г PuO_2 плотностью 1,3 г/см³. Образец содержал 706 г плутония (10 % ^{240}Pu) и 1 % воды. Цилиндрический образец имел 8,35 см в диаметре и 11,24 см по высоте. Гладкая кривая на рис. 14.15 — это спектр излучения нейтронов при спонтанном делении ^{240}Pu (см. рис. 14.7 и уравнение (14.11)). Расчетный спектр нейтронов утечки в образце представляет гистограммное распределение с указанием погрешности 1σ . Средняя энергия спектра нейтронов утечки — 1,91 МэВ сравнима с величиной 1,93 МэВ для спектра излучения. Это показывает очень небольшое изменение энергетического спектра первичных нейтронов в материале PuO_2 . Небольшой подъем в спектре нейтронов утечки между 0,6 и 1,0 МэВ обусловлен неупругим рассеянием на ядрах плутония и упругим рассеянием на ядрах кислоро-

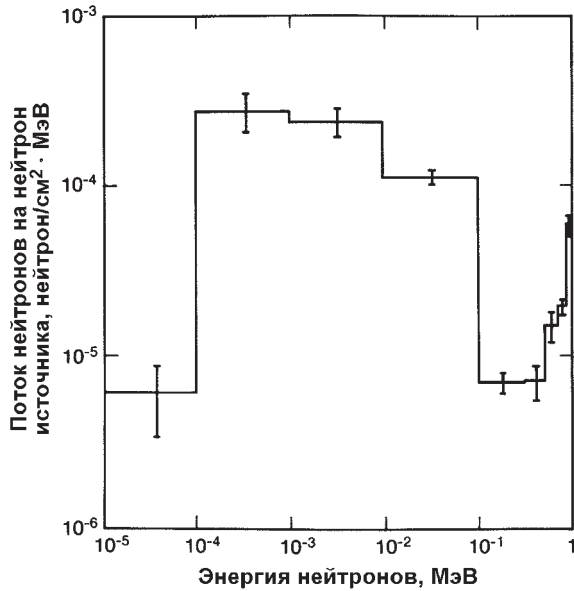


Рис. 14.14. Спектр нейтронов утечки из баллона с UF_6 массой 2273 кг (2,5% ^{235}U) с равномерно распределенными источниками нейтронов с энергией 1 МэВ

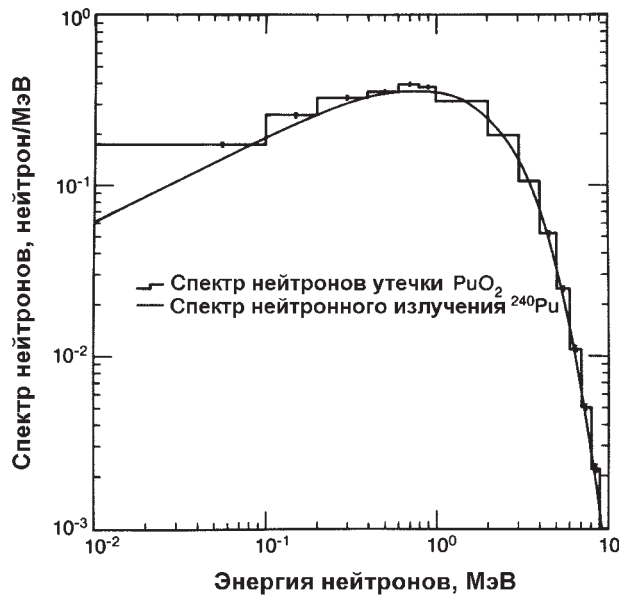


Рис. 14.15. Спектр нейтронов утечки из образца PuO_2 массой 800 г (10% ^{240}Pu). Предполагаются характеристики энергетического спектра как при спонтанном делении ^{240}Pu . Первичные нейтроны равномерно распределены в объеме образца

да. Такой подъем должен увеличиваться с добавлением влаги. Для данного образца умножение нейтронов утечки составляет приблизительно 1,04.

14.4 ЭФФЕКТИВНОСТЬ РЕГИСТРАЦИИ НЕЙТРОНОВ

Уравнение (14.1) определяет эффективность детектора ϵ как число отсчетов (импульсов), зарегистрированных детектором, отнесенных к количеству нейтронов, излученных из образца. В этом разделе рассматриваются важные факторы, влияющие на ϵ для пропорциональных ^3He -счетчиков с полиэтиленовым замедлителем. Эти факторы включают расположение гелиевых счетчиков внутри полиэтиленового замедлителя, конструкцию замедлителя и спектр нейтронов утечки, покинувших образец. Кроме того, отличия в энергетическом спектре сигнала и фоновых нейтронов могут быть использованы для повышения отношения полезного сигнала к фону.

14.4.1 Расположение гелиевых счетчиков в замедлителе

При заданной геометрии замедлителя размещение и количество ^3He пропорциональных счетчиков сильно влияет на эффективность регистрации нейтронов. Для примера был выполнен ряд расчетов эффективности с использованием программы MCNP [7] для переменного количества гелиевых счетчиков, размещенных внутри полиэтиленового кольца высотой 1 м. Счетчики имели диаметр 2,54 см и были наполнены ^3He под давлением 4 атм (эффективность регистрации тепловых нейтронов 77 %). Внутренний и внешний диаметры кольца составляют 17,8 и 38,1 см, соответственно. Гелиевые счетчики равномерно размещались внутри кольца по окружности диаметром 27,9 см. При расчетах предполагалось, что источник имеет моноэнергетический спектр нейтронов с энергией 1 МэВ. Две кривые на рис. 14.16 демонстрируют результаты расчетов. Кривая, относящаяся к левой оси ординат, представляет полную эффективность регистрации в зависи-

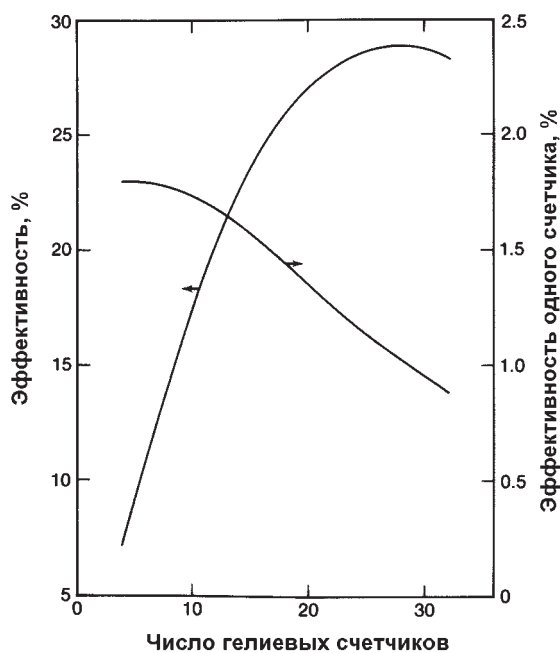


Рис. 14.16. Результаты расчетов методом Монте-Карло эффективности регистрации полного потока нейтронов как функции числа гелиевых счетчиков для конфигурации, описанной в разделе 14.4.1

мости от числа гелиевых счетчиков. Из этой кривой видно, что наибольшая эффективность счета находится приблизительно на уровне 29 % для 28 гелиевых счетчиков. Так как гелиевые счетчики дороги, иногда приходится идти на компромисс при выборе полной эффективности регистрации. Кривая, относящаяся к правой оси ординат, представляет эффективность регистрации, отнесенную к одному гелиевому счетчику (показатель цены эффективности), в зависимости от количества счетчиков. Приемлемое компромиссное решение для этого примера составило бы 16 гелиевых счетчиков. Выбор количества счетчиков также зависит от интенсивности излучения нейтронов из образца и желаемой точности измерений.

14.4.2 Конструкция замедлителя

Для определенного количества и расположения гелиевых счетчиков масса и расположение полиэтиленового замедлителя также могут существенно влиять на эффективность регистрации. В качестве примера были проведены расчеты для полиэтиленовой пластины длиной 25,4 см, высотой 15,3 см и толщиной 4,0 см (рис. 14.17). Два ^3He -счетчика были встроены в пластину параллельно ее продольной оси и находились на расстоянии 5,3 см друг от друга. Счетчики имеют активную длину 25,4 см, заполнены ^3He под давлением 4 атм и имеют диаметр 2,54 см. Источник нейтронов Cf-252 размещен на расстоянии 40 см от пластины на линии, перпендикулярной плоскости гелиевых счетчиков. Для расчета эффективности регистрации нейтронов для различной толщины полиэтилена спереди и сзади гелиевых счетчиков (по отношению к источнику) использовалась программа MCNP [7]. Для расчетов был использован спектр деления Уатта (уравнение (14.11)) при $A = 1,025$ и $B = 2,926$ для Cf-252. Эти параметры и геометрия пластины представляют типовые значения, встречающиеся в реальных детекторах нейтронов.

Результаты расчетов представлены в табл. 14.6 и на рис. 14.18. Статистическая погрешность вычислений относительных эффективностей составляет приблизительно $\pm 1\%$. Полная толщина пластины может быть получена сложением

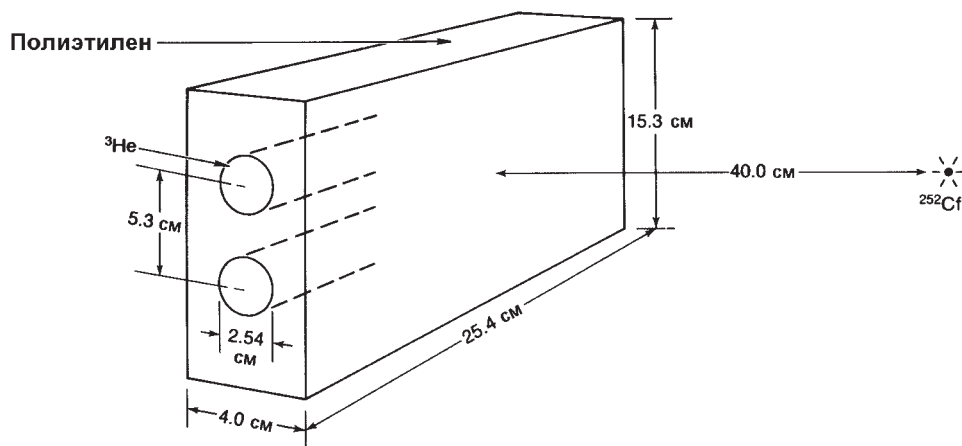


Рис. 14.17. Геометрия, используемая для серии вычислений эффективности детектора методом Монте-Карло. При расчетах изменялась толщина полиэтилена спереди и сзади двух гелиевых счетчиков

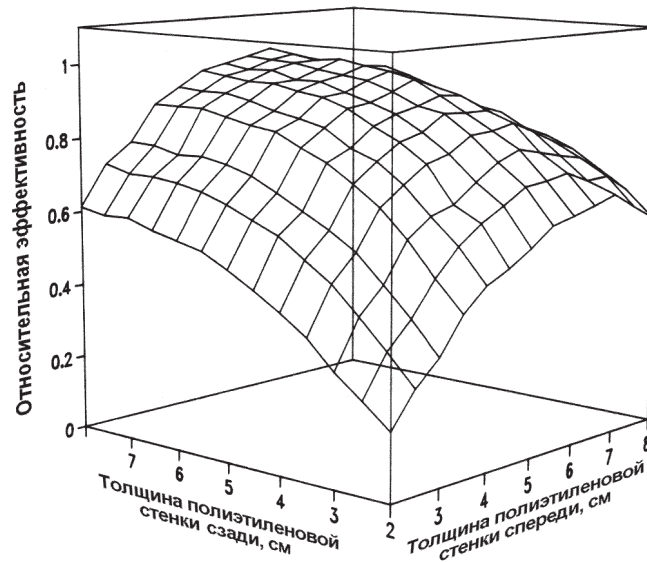


Рис. 14.18. Зависимость относительной эффективности регистрации нейтронов ^{252}Cf от толщины полиэтиленовой стенки спереди и сзади небольшого плоского детектора, показанного на рис. 14.17

толщины полиэтилена спереди и сзади счетчиков, потому что толщина измеряется от нити гелиевых счетчиков. Наиболее высокую эффективность регистрации обеспечивает конфигурация замедлителя с полиэтиленом толщиной 6 см перед гелиевыми счетчиками и толщиной 8 см за ними. Отметим, что при заданной толщине полиэтилена, находящегося сзади счетчиков, с увеличением толщины полиэтилена перед счетчиками эффективность регистрации сначала увеличивается, а затем снижается. Снижение объясняется захватом нейтронов в водороде. При заданной толщине полиэтилена перед счетчиками с увеличением толщины полиэтилена сзади счетчиков эффективность приближается к асимптотическому значению. Этот эффект объясняется отражением нейтронов от полиэтилена, находящегося сзади счетчиков. Часто ограничения в габаритах и весе ограничивают и полную толщину полиэтиленового замедлителя. В США полиэтилен обычно поставляется в пластинах толщиной 10,2 см. Если для простоты производства общая толщина пластины ограничивается этой величиной, то для оптимальной эффективности гелиевые счетчики следует размещать с толщиной полиэтилена спереди 4,6 см и сзади — 5,6 см.

14.4.3 Влияние энергетического спектра нейтронов

Для конкретной конструкции детектора эффективность регистрации нейтронов будет зависеть от энергии падающего нейтрона ввиду зависимости сечения реакции $^3\text{He}(n,p)$ от энергии нейтрона и замедляющего влияния водорода в полиэтилене. Зная удельный спектр нейтронов утечки, можно спроектировать детектор таким образом, чтобы сделать эффективность максимальной для этого спектра. В случае практического применения, когда отношение сигнала к фону невелико, желательно спроектировать детектор, который мог бы различать фоно-

вые нейтроны с отличающимися энергетическими спектрами. В этом разделе приведены два примера — один для нейтронов из UF_6 , а другой для нейтронов из PuO_2 .

Коллимированные плоские детекторы нейтронов спроектированы так, чтобы контролировать уровни потока нейтронов в UF_6 на заводах с центрифужным разделением изотопов урана. Описание детекторов приведено в разделе 15.3.1 и проиллюстрировано на рис. 15.4 главы 15. Каждый детектор содержит одиннадцать гелиевых счетчиков диаметром 2,54 см, размещенных в полиэтиленовой пластине размерами 10,2×30,5×61 см. Пластина окружена кадмиевой оболочкой и покрыта толстым полиэтиленовым экраном, кроме открытой лицевой поверхности площадью 1860 см², которая покрыта слоем полиэтилена толщиной 1,3 см. Полиэтилен вместе с кадмием отфильтровывает фоновые нейтроны низкой энергии. На рис. 14.19 показан поперечный разрез детектора.

Таблица 14.6 — Относительная эффективность простого плоского детектора для полиэтиленового замедлителя с переменной толщиной стенки спереди и сзади ³He-счетчиков

		Толщина передней полиэтиленовой стенки, см												
		2	2,5	3	3,5	4	4,5	5	5,5	6	6,5	7	7,5	8
Толщина задней полиэтиленовой стенки, см	2	0,181	0,271	0,334	0,430	0,489	0,521	0,560	0,608	0,622	0,639	0,659	0,615	0,575
	2,5	0,242	0,351	0,419	0,508	0,577	0,625	0,661	0,700	0,706	0,717	0,687	0,690	0,644
	3	0,301	0,426	0,494	0,596	0,645	0,665	0,713	0,757	0,782	0,765	0,747	0,733	0,692
	3,5	0,374	0,497	0,565	0,668	0,717	0,762	0,779	0,821	0,825	0,839	0,807	0,771	0,742
	4	0,425	0,547	0,611	0,719	0,769	0,812	0,830	0,872	0,867	0,866	0,826	0,799	0,773
	4,5	0,469	0,597	0,650	0,766	0,797	0,847	0,871	0,886	0,908	0,901	0,862	0,839	0,792
	5	0,511	0,628	0,688	0,798	0,844	0,887	0,896	0,919	0,946	0,919	0,889	0,849	0,808
	5,5	0,547	0,658	0,723	0,833	0,860	0,911	0,917	0,943	0,963	0,944	0,894	0,848	0,810
6	0,564	0,682	0,745	0,843	0,874	0,921	0,941	0,952	0,973	0,965	0,898	0,858	0,815	
6,5	0,580	0,696	0,759	0,858	0,895	0,936	0,940	0,962	0,986	0,955	0,910	0,875	0,820	
7	0,604	0,703	0,755	0,874	0,909	0,935	0,961	0,975	0,977	0,963	0,921	0,873	0,832	
7,5	0,600	0,703	0,773	0,873	0,908	0,945	0,957	0,978	0,989	0,968	0,920	0,873	0,826	
8	0,613	0,722	0,775	0,872	0,913	0,954	0,968	0,983	1,000	0,969	0,929	0,883	0,835	

Монитор для анализа UF_6 спроектирован так, чтобы получить зависимость эффективности от энергии нейтронов, аналогичную энергетическому спектру нейтронов $^{19}F(\alpha,n)^{22}Na$ (см. рис. 14.10). В конструкции также предусмотрено сведение к минимуму отклика на фоновые нейтроны космического излучения с низкой энергией. Это было реализовано путем проведения измерений и расчетов влияния полиэтиленовых фильтров с тремя различными толщинами с лицевой стороны детектора [11]. На рис. 14.20 представлен график зависимости эффективности от энергии нейтронов для трех толщин полиэтилена: 0; 1,3 и 2,5 см. Действие полиэтиленового фильтра заключается в снижении эффективности регистрации падающих нейтронов для всех энергий, но с большим снижением для более низких энергий, свойственных фоновым нейтронам космического излучения. Эти расчеты показывают, что фильтр толщиной 1,3 см является хорошим компромиссным решением между высокой эффективностью регистрации для нейтро-

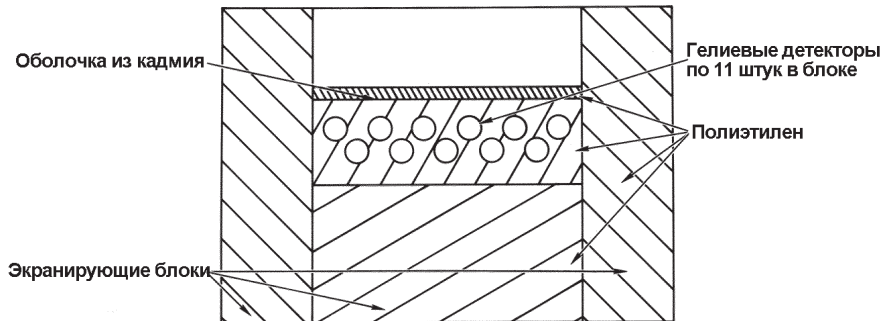


Рис. 14.19. Поперечный разрез коллимированного плоского детектора нейтронов

нов с энергией 1,0 МэВ и низкой эффективностью регистрации для нейтронов с энергией 0,1 МэВ. Более детальное исследование оптимизации детектора UF_6 с целью получения малого отношения сигнала к фону приведено в [12].

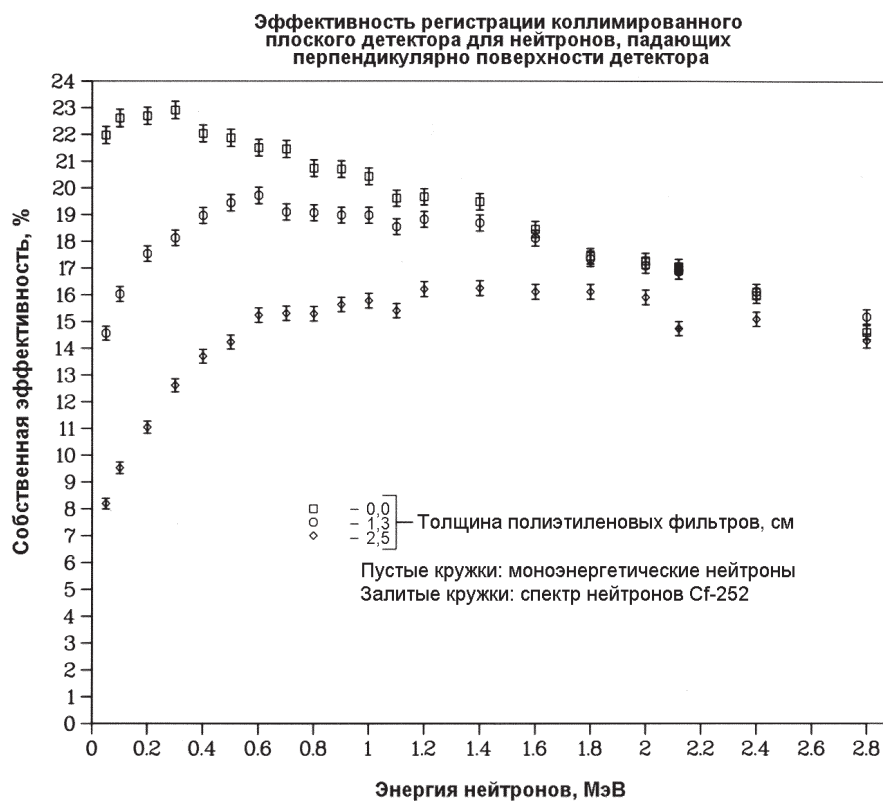


Рис. 14.20. Зависимость расчетной эффективности регистрации коллимированного плоского детектора от энергии нейтронов, падающих перпендикулярно поверхности детектора. Показаны результаты для трех толщин полиэтиленового фильтра, покрывающего лицевую сторону: 0, 1,3 и 2,5 см

Высокоуровневый счетчик нейтронных совпадений HLNCC является детектором, сконструированным, в первую очередь, для пассивной регистрации нейтронных совпадений от PuO_2 (см. [13] и раздел 17.2.2 главы 17). Зависимость его эффективности от энергии нейтронов представлена на рис. 14.21. Если эту зависимость сравнить со спектром нейтронов утечки из типичного образца PuO_2 (см. рис. 14.15), то можно увидеть, что эффективность HLNCC максимальна для энергии нейтронов, меньшей, чем та, с которой ему приходится работать. Другими словами, HLNCC, который разрабатывался как легкий портативный прибор, содержит слишком мало полиэтилена для полной термализации нейтронов.

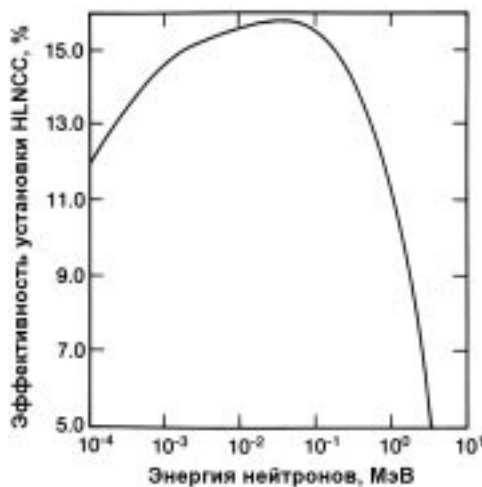


Рис. 14.21. Зависимость расчетной эффективности регистрации нейтронов высокоуровневого счетчика нейтронных совпадений HLNCC от энергии нейтронов, излучаемых изотропно в центре детекторного колодца

ЛИТЕРАТУРА

1. W.B. Wilson, R.T. Perry, and J.E. Stewart, "Neutron Production in UO_2F_2 from the Spontaneous-Fission and Alpha Decay of Uranium Nuclides and Subsequent $^{17,18}\text{O}(\alpha, n)$ and $^{19}\text{F}(\alpha, n)$ Reactions," in "Applied Nuclear Data Research and Development, April 1-June 30, 1981," P.G. Young, Comp., Los Alamos National Laboratory report LA-9060-PR (December 1981), p.50.
2. R.H. Augustson, R.B. Walton, W. Harbarger, J. Hicks, G. Timmons, D. Shissler, R. Tayloe, S. Jones, R. Harris, and L. Fields, "Measurements of Uranium Holdup in an Operating Gaseous Diffusion Enrichment Plant," in "Proceedings of the ANS/INMM Conference on Safeguards Technology: The Process-Safeguards Interface," Hilton Head Island, South Carolina, November 28-December 2, 1983, US DOE New Brunswick Laboratory, Conf. No. 831106 (August 1984), pp.77-88.
3. W.B. Wilson, R.T. Perry, J.E. Stewart, T.R. England, D.G. Madlund, and E.D. Arthur, "Development of the SOURCES Code and Data Library for the Calculation of Neutron Sources and Spectra from (α, n) Reactions, Spontaneous Fission, and β Delayed Neutrons," in "Applied Nuclear Data Research and Development Semi-annual Progress report, October 1, 1982-March 31, 1983," E.D. Arthur, Compiler, Los Alamos National Laboratory report LA-9841-PR (August 1983), p.65.

4. W.B. Wilson, "Calculations of (α ,n) Neutron Production in PuO₂ with Variable Moisture and Fluorine Contamination," Los Alamos National Laboratory memorandum T-2-M-1581, to J.E. Stewart (March 1985).
5. W.B. Wilson, R.T. Perry, and J.E. Stewart, "Neutrons from the Spontaneous Fission of Plutonium Nuclides and from the (α ,n) Reactions of Their Decay Alpha Particles with Trace Contaminants of Li, Be, B, C, N, O, F, Na, Mg, Al, Si, Cl, and As in Pu Metal," Los Alamos National Laboratory report (available on request from Group N-1, MS E540).
6. J.E. Stewart, "Neutron Production by Alpha Particles in Thin Uranium Hexafluoride," Los Alamos National Laboratory report LA-9838-MS (July 1983).
7. Los Alamos Monte Carlo Group X-6, "MCNP — A General Monte Carlo Code for Neutron and Photon Transport, Version 2B," Los Alamos Scientific Laboratory report LA-7396-M, Rev. (November 1979).
8. N. Ensslin, J. Stewart, and J. Sapir, "Self-Multiplication Correction Factors for Neutron Coincidence Counting," Nuclear Materials Management VIII (2), 60 (1979).
9. E.D. Cashwell, J.R. Neergaard, W.M. Taylor, and G.D. Turner, "MCN: A Neutron Monte Carlo Code," Los Alamos Scientific Laboratory report LA-4751 (1972).
10. R.B. Walton, T.D. Reilly, J.L. Parker, J.H. Menzel, E.D. Marshall, and L.W. Fields, "Measurements of UF₆ Cylinders with Portable Instruments," Nuclear Technology 21, 133 (1974).
11. J.E. Stewart and S.M. Simmonds, "Neutron Energy Response of an Area Neutron Monitor," in "Safeguards and Security Progress Report, January-December 1984," Los Alamos Laboratory report LA-10529-PR (1986), p.85.
12. J.E. Stewart and H.O. Menlove, "Design Study of an Optimized In-Cascade Neutron Monitor for Centrifuge Plants," in "Safeguards and Security Status Report: February-July 1982," Los Alamos National Laboratory report LA-9595-PR (February 1983), pp.57-63.
13. M.S. Krick and H.O. Menlove, "The High-Level Neutron Coincidence Counter (HLNCC): User's Manual," Los Alamos Scientific Laboratory report LA-7779-M (ISPO-53) (June 1979).

Глава 15

Приборы регистрации полного потока нейтронов и их применение

Дж. Спринкл
(Переводчик Н.В. Мошкина)

15.1 ВВЕДЕНИЕ

Приборы регистрации полного потока нейтронов (в российской практике принято название "нейтронные радиометры" — прим. пер.) обычно представляют собой приборы, которые не измеряют непосредственно энергию нейтронов. Они являются более простыми, чем счетчики нейтронных совпадений, способны обнаруживать меньшие количества материалов, излучающих нейтроны, и менее чувствительны к эффектам размножения нейтронов и изменениям эффективности. Они в меньшей степени способны различать изотопы или химические соединения, в которых образуются нейтроны. Иногда в этих приборах предусмотрена возможность частичной энергетической дискриминации для уменьшения сигнала от нежелательных составляющих регистрируемого излучения. Как правило, эти приборы используются в административном контроле для гарантии того, что анализируются только предназначенные для этого материалы.

Во многих приборах регистрации полного потока нейтронов используются детекторы на основе ^3He с замедлителем. Детекторы на основе ^3He относительно просты в эксплуатации и обладают высокой надежностью. Они могут выдержать облучение до флюенса приблизительно 10^{13} быстрых нейтронов/см² без серьезного радиационного повреждения и обеспечить необходимую дискриминацию полей гамма-излучения мощностью дозы менее 1 Р/ч. Приемлемая эффективность регистрации может быть достигнута тщательной проработкой конструкции. Счетчики нейтронов (производства США) имеют обычно диаметр 2,54 см и наполнены ^3He под давлением 4 атм. Эффективность регистрации таких счетчиков в поле тепловых нейтронов составляет около 90 %. Для регистрации нейтронов спонтанного деления с эффективностью около 20 % может быть сконструирована сборка детекторов с ^3He -счетчиками, размещенными на расстоянии 5 см друг от друга. Аналогичная сборка детекторов со счетчиками, наполненными BF_3 , обеспечивает лучшую дискриминацию гамма-излучения (глава 13).

В этой главе описано несколько приборов регистрации полного потока нейтронов и их применение в порядке возрастания их размеров и сложности. В заключение приведены примеры трех приборов, используемых для специальных применений: два монитора влажности и энергетически независимый "длинный" счетчик.

15.2 НАПРАВЛЕННЫЙ НЕЙТРОННЫЙ ЗОНД SNAP

Направленный нейтронный зонд SNAP (Shielded Neutron Assay Probe) является самым простым и портативным нейтронным детектором из описанных в

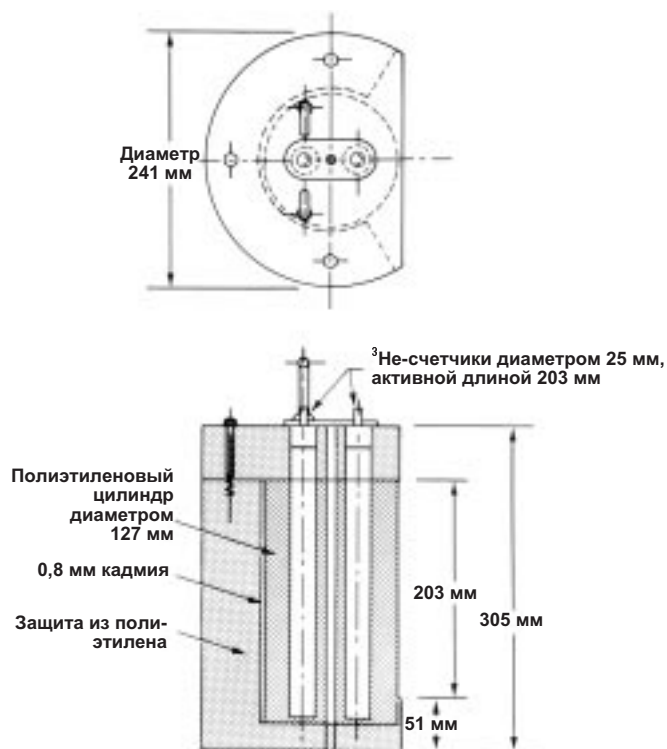


Рис. 15.1. Детектор SNAP-II [1]

этой главе. Его усовершенствованная версия SNAP-II [1] показана на рис. 15.1. SNAP-II состоит из двух ^3He -счетчиков диаметром 2,5 см, активной длиной 20 см и давлением 4 атм, размещенных в полиэтиленовом цилиндре диаметром 12,7 см. Диаметр цилиндра 12,7 см оптимален для регистрации нейтронов деления с энергиями от 1 до 2 МэВ. Поверхность полиэтиленового цилиндра покрыта тонким листом кадмия, преимущественно для поглощения фоновых тепловых нейтронов. Вдоль оси цилиндра имеется сквозной канал для размещения отдельных топливных стержней (ТВЭЛов — прим. пер.). Такая конфигурация обеспечивает высокую эффективность анализа ТВЭЛов, содержащих плутоний. С внешней стороны цилиндра расположена направленная защита толщиной 5,7 см; ограничение защиты по толщине обусловлено требованием портативности детектора. Вес прибора SNAP-II составляет всего 10 кг.

Направленная защита SNAP-II обеспечивает угол обзора в 120° . На рис. 15.2 представлена зависимость относительной чувствительности детектора от угла, под которым относительно оси детектора размещается источник PuLi. Отношение эффективностей регистрации при размещении источника с передней и задней сторон детектора составляет 4,2 для источника PuLi (средняя энергия нейтронов 0,65 МэВ) и снижается до 2,2 для источника нейтронов спонтанного деления ^{252}Cf (средняя энергия нейтронов 2,2 МэВ).

Собственная эффективность детектора SNAP-II для нейтронов деления составляет приблизительно 17 %, что значительно лучше, чем эффективность 10 % исходной модели детектора SNAP [2]. Кроме того, площадь активного окна детектора SNAP-II более, чем в два раза превышает площадь активного окна его пред-

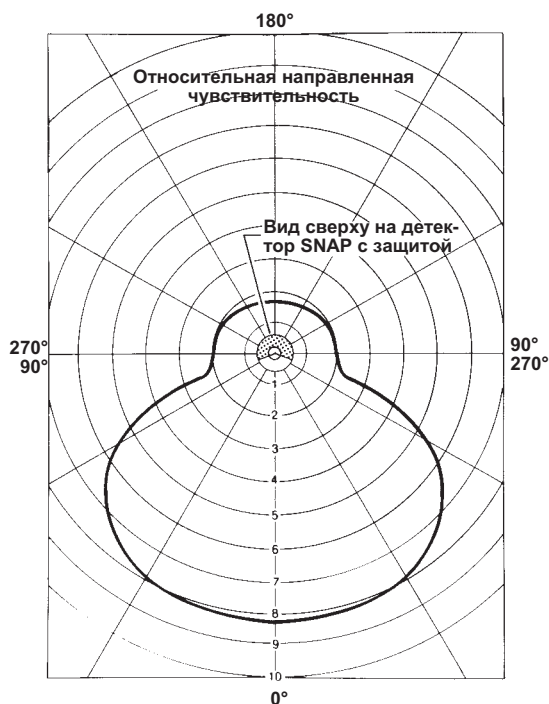


Рис.15.2. Круговая диаграмма чувствительности детектора SNAP, измеренная в средней плоскости с источником $PuLi$ (средняя энергия — 0,65 МэВ) [2]

шественника. Следовательно, полная эффективность регистрации для точечного источника, находящегося на расстоянии 1 м, увеличивается в 4,5 раза до значения приблизительно 0,01 % [1]. Для других расстояний между источником и детектором полная эффективность регистрации пропорциональна $(r + a)^{-2}$, где r — расстояние от оси детектора, измеряемое в сантиметрах, a — постоянная, зависящая от диаметра замедляющего цилиндра. Обычно постоянная a равна примерно 3 см, а для того, чтобы аппроксимация была допустима, расстояние r должно быть больше, чем $3a$. Эта функция эффективности не оправдывает себя в случае, когда детектор находится рядом с поверхностями, отражающими нейтроны, такими как бетонный пол. Для полевых условий, в которых требуется использование SNAP-II в зоне, окруженной нейтронными источниками и отражателями, определение соответствующего фона может быть затруднено. В этих обстоятельствах полезно установить подходящий полиэтиленовый клин в угол обзора детектора.

SNAP-II был разработан для работы в полевых условиях и используется в режиме полного счета нейтронов, поскольку измеряемый сигнал часто низок. В этих условиях важно использовать простую и компактную электронику. Для данного применения хорошо подходят такие коммерчески доступные компактные устройства, как Eberline SAM I или Ludlum Model 22. Они содержат источник высокого напряжения, платы предусилителя и усилителя, дискриминаторы и счетчики импульсов в одном небольшом корпусе.

Детектор SNAP-II предоставляет очень ограниченный объем информации об энергии или направлении регистрируемых нейтронов. Часто он используется для измерения отложений или проверочных измерений, когда недоступны эталонные стандартные образцы. Примеры таких применений приведены ниже.

15.2.1 Контроль металлического плутония

Детектор SNAP использовался для контроля содержания ^{240}Pu в слитках металлического плутония в Хэнфорде (Ричланд, штат Вашингтон) [3]. Основным источником нейтронов в металлическом плутонии является спонтанное деление изотопа ^{240}Pu . Кроме того, в слитках, содержащих 2000 г плутония, ярко выражены эффекты размножения нейтронов, которые могут увеличивать полную скорость счета нейтронов на 90 % и зависят от геометрии слитков.

Измеренный отклик детектора SNAP, представляющий собой полную скорость счета нейтронов T (полное число нейтронов в секунду), выражался в виде

$$T(n/c) = k m I F, \quad (15.1)$$

где k — градуировочная постоянная;

m — масса плутония;

I — массовая доля изотопа ^{240}Pu ;

F — коэффициент, учитывающий размножение нейтронов в слитке.

Коэффициент F был определен эмпирически подгонкой серии расчетов размножения нейтронов в объеме слитков методом Монте-Карло по следующему выражению:

$$F = 1 + (1 - aI)m / b, \quad (15.2)$$

$$a = \frac{619,5 (d - 2,673)^2 + 1801}{b}, \quad (15.3)$$

$$b = 417,8 (d - 1,333)^2 + 1757, \quad (15.4)$$

где d — диаметр слитка в дюймах;

a, b — коэффициенты, приведенные в дюймах.

Уравнение (15.1) может быть решено либо относительно m , либо относительно I . В Хэнфорде один из слитков был выбран в качестве "стандартного образца", а остальные считались "неизвестными" образцами. Статистический анализ 248 слитков выявил 8 выбросов. Было проверено содержание ^{240}Pu в оставшихся 240 слитках. Диапазон масс слитков составил от 1453 до 2204 г, а массовая доля изотопа ^{240}Pu варьировалась в диапазоне от 4,6 до 18,1 %. Неопределенность измерения составила 2 % (1σ), а сходимость результатов измерений при времени измерения 30 с была лучше 1 %.

15.2.2 Контроль баллонов с UF_6

Детекторы SNAP использовались на установках по обогащению урана и в хранилищах для проверки содержания баллонов с UF_6 [4]. В гексафториде урана нейтроны возникают в результате спонтанного деления изотопа ^{238}U и в результате реакции $^{19}\text{F}(\alpha, n)^{22}\text{Na}$. Основным излучателем альфа-частиц является ^{234}U . В природном UF_6 80 % нейтронов образуются в (α, n) -реакциях, а оставшиеся — при спонтанном делении. С увеличением обогащения вклад нейтронов (α, n) -реакции резко возрастает. В частности, при увеличении обогащения с 3 до 90 % интенсивность образования нейтронов возрастает в 30 раз. Таким образом, полная скорость счета нейтронов является чувствительной мерой массы и обогащения UF_6 . Нейтроны обладают достаточно хорошей проникающей способностью, однако при прохождении в объеме UF_6 имеют место эффекты поглощения и размноже-

ния. В табл. 15.1 представлены вычисленные коэффициенты утечки нейтронов из различных баллонов. Для более высоких обогащений эффект размножения нейтронов начинает преобладать над эффектом их поглощения.

При проверке содержимого баллонов с UF_6 детектор SNAP размещают вплотную к баллону, параллельно его оси, в середине баллона. Такая геометрия является менее позиционно зависящей, менее чувствительной к высоте заполнения баллона и более удобной для оператора, чем геометрия, в которой оператору необходимо держать SNAP напротив одного из концов баллона. Фон от соседних баллонов часто высок. Приемлемые оценки значений фона (на уровне моря) получаются скорее при направлении активного окна детектора вверх, чем в направлении вниз, в сторону баллона. Отклик от баллона, стоящего на краю большого ряда баллонов, может оказаться меньше, чем отклик от баллона, находящегося в центре такого ряда. Для баллонов, содержащих UF_6 разных обогащений, скорость полного счета нейтронов T дается выражением

$$T = [cf(234) + df(238)]m, \quad (15.5)$$

где m — полная масса урана;

c, d — эмпирические градуировочные постоянные;

$f(234), f(238)$ — массовые доли изотопов ^{234}U и ^{238}U , соответственно.

Таблица 15.1 – Коэффициент утечки нейтронов для различных баллонов

Тип баллона	Масса UF_6 , кг	Обогащение по ^{235}U , вес. %	Коэффициент утечки
14 тонн	12 700	0,71	0,55
30В	15 00	0,71	0,80
12В	140	3,00	0,97
5А	15	10,00	1,00
5А	15	35,00	1,00
2S	1	65,00	1,01
2S	1	90,00	1,02

При низких обогащениях $f(238)$ почти постоянна, а отношение $f(234)/f(235)$ очень близко к константе. Тогда уравнение (15.5) может быть упрощено:

$$T = [e + gf(235)]m, \quad (15.6)$$

где e и g — градуировочные постоянные.

Очевидно, что если изотопный состав UF_6 для всех баллонов одинаков, уравнение (15.6) может быть еще более упрощено до вида $T = hm$, с единственной градуировочной постоянной h .

Для баллонов весом 2,5, 10 и 14 тонн значение неопределенности измерения обычно равно 5 %. При временах измерения 60 и 120 с статистика не дает ощутимого вклада в эту неопределенность. Опыт, полученный в полевых условиях, показывает, что для каждого баллона требуется индивидуальная градуировка, воз-

можно, вследствие того, что детектор видит разные баллоны под различными телесными углами. Если высота заполнения цилиндра изменится на 50 %, неопределенность измерения возрастет приблизительно на 10 %. Измерения, проводимые детектором SNAP, могут выявить наличие твердых остатков в опустошенных баллонах (так называемые хвосты), однако небольшое количество измеряемого материала обуславливает плохую сходимость результатов измерения, что приводит к необходимости увеличения времени измерения до 1000 с.

15.2.3 Измерение отложений

Детекторы SNAP использовались на установках ядерного топливного цикла для измерения отложений ядерных материалов [5-7]. Измеряемый материал должен являться мощным источником нейтронного излучения. Этому условию удовлетворяют все соединения плутония. Чтобы получить достаточно большой сигнал от урана, он должен быть обогащен и находиться в матрице, способствующей возникновению (α, n)-реакций.

Основным преимуществом использования методик, основанных на регистрации нейтронного излучения, при измерении отложений является высокая проникающая способность нейтронов. Можно зарегистрировать нейтронное излучение из насосов, печей и другого тяжелого оборудования, которое является слишком плотным для прохождения гамма-излучения. Недостатками нейтронных методик являются низкое пространственное разрешение, недостаточная изотопная избирательность и чувствительность к эффектам матрицы. Эффекты матрицы включают в себя отражение, размножение, замедление нейтронов на присутствующей влаге и реакции (α, n) в материалах с низким Z . Большинство из этих эффектов в той или иной степени присутствуют всегда при измерении отложений и затрудняют интерпретацию результатов нейтронных измерений. Обычно более надежным подходом является использование комбинации нейтронных и гамма-измерений.

По причинам, упомянутым выше, для градуировки детектора SNAP при измерении отложений необходимы стандартные образцы с изотопным и химическим составами, близкими материалам, используемым в технологическом процессе. При градуировке для конкретной геометрии полезно использовать макеты реального оборудования. Для всех измерений отложений в технологическом процессе типичны значения неопределенности измерений от 25 до 50 %. Дополнительная информация по измерению отложений с использованием нейтронных методик представлена в разделе 20.6 главы 20.

15.2.4 Другие применения

Простые детекторы типа SNAP могут быть использованы в качестве нейтронных мониторов внутри и вне помещений хранилищ и производств [8, 9]. Мониторы используются для контроля постоянства нейтронного потока. В зависимости от применения, они могут быть оснащены стойкой к внешним воздействиям электроникой, простой серийной электроникой или ^3He -счетчиками без замедлителя.

15.3 ПЛОСКИЕ ДЕТЕКТОРЫ

Плоские детекторы представляют собой сборку детекторов тепловых нейтронов, вставленных в пластину из замедляющего материала. Они больше и тяжелее, чем детекторы SNAP, однако обеспечивают более высокую эффективность регистрации, а при добавлении более тяжелой защиты и коллиматоров — и лучшую направленность. Плоские детекторы, как правило, работают в комбинации с модулями электроники в стандарте NIM (такими, как блок высокого напряжения, усилитель, одноканальный анализатор и счетчик импульсов) и обычными предусилителями, которые достаточно малы и размещаются внутри соединительной коробки, содержащей схему подключения счетчиков. Иногда для анализа амплитуд импульсов применяется многоканальный анализатор, однако в обычных измерениях чаще находят применение счетчики импульсов и одноканальные анализаторы.

Часто плоские детекторы состоят из ^3He -счетчиков, размещенных параллельно друг другу в блоке замедлителя [10]. Размеры и число счетчиков зависят от конкретного применения. На рис. 15.3 показан вариант плоского детектора, который содержит девять ^3He -счетчиков диаметром 2,5 см и давлением 4 атм, помещенных в полиэтиленовую пластину толщиной 10 см. Соединительная коробка жестко фиксирует положение счетчиков и закрывает провод высокого напряжения и предусилитель в герметичном электрически экранированном модуле. Для некоторых задач полиэтиленовая пластина покрывается тонким листом кадмия для поглощения тепловых нейтронов.

15.3.1 Контроль обогащения UF_6

Плоский детектор может работать без внешней защиты или с защитой для получения отклика, чувствительного к направлению. На рис. 15.4 представлен направленный плоский детектор с защитой, предназначенный для контроля обогащения UF_6 . Угол обзора детектора равен $\sim 90^\circ$, т.е. меньше, чем у SNAP-II. Однако

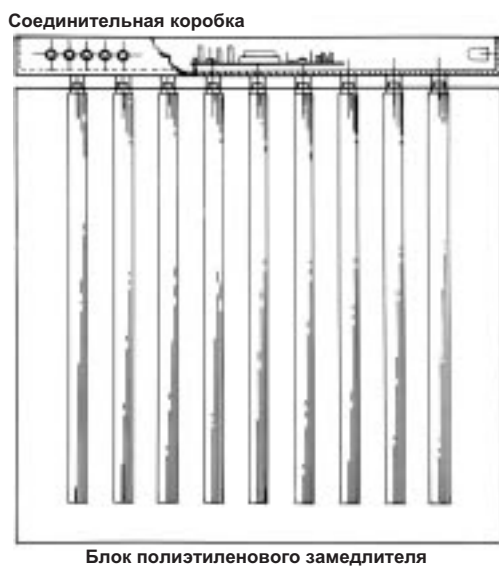


Рис. 15.3. Вид сбоку плоского детектора с девятью ^3He пропорциональными счетчиками диаметром 2,5 см. В соединительной коробке находится плата предусилителя



Рис. 15.4. Плоский детектор с направленной защитой, разработанный для контроля обогащения UF_6

отношение эффективностей регистрации плоского детектора при положении источника спереди и сзади детектора почти в пять раз выше. Это отношение равно 33 для нейтронов источника $AmLi$ и равно 9 для нейтронов источника ^{252}Cf . Собственная эффективность регистрации составляет $\sim 18\%$ для нейтронов спектра деления. Полная эффективность регистрации для точечного источника изменяется приблизительно как $1/r$ для расстояний r , меньших, чем размеры детектора, и как $1/r^2$ для расстояний r , превышающих размеры детектора в два раза. Такое соотношение нарушается в присутствии поглотителей или отражателей нейтронов. Для измерения фонового нейтронного излучения детектор может быть повернут на 180° в сторону, противоположную измеряемому источнику, либо активное окно детектора может быть покрыто толстым слоем полиэтилена. Полиэтилен толщиной около 10 см снижает нейтронный сигнал почти в 10 раз.

Для проверки функционирования центрифужных установок была предложена система плоских детекторов [11]. Возможность регистрации обусловлена тем, что производство высокообогащенного урана сопровождается увеличением нейтронных полей в результате (α, n) -реакций под действием распада ^{234}U в газообразном UF_6 . Благодаря более низкой массе, $^{234}UF_6$ в процессе разделения обогащается даже в большей степени, чем $^{235}UF_6$. Поскольку количество высокообогащенного урана может быть небольшим, то возрастание отклика плоского детектора также может быть незначительным по сравнению с обычным фоном. Чувствительность можно повысить путем оптимизации конструкции (см. главу 14), использованием фильтрации и применением методик принятия решений [12].

Предлагаемая система будет состоять из системы оптимизированных детекторов, размещенных по всему зданию технологического процесса, с централизованным сбором и обработкой данных. Во время обычной работы в отсутствие оператора компьютер будет дистанционно считывать показания детекторов. С помощью экспериментальных измерений заводских стандартных образцов и модели-

рования методом Монте-Карло, чувствительность регистрации должна быть установлена таким образом, чтобы обеспечивать контроль за производством высокообогащенного урана. Возможными источниками ложных тревог являются обычные перемещения баллонов с UF_6 и нейтронные источники, используемые для проверки аварийной сигнализации системы контроля ядерной безопасности.

15.3.2 Измерение отложений

Плоские детекторы использовались для измерений отложений плутония после операций зачистки [13]. В модели, используемой для интерпретации результатов измерений, предполагается, что геометрия исходного материала может быть аппроксимирована однородной плоскостью вблизи пола. Истинность этого предположения может быть проверена путем перемещения детектора в различные позиции и повтором измерений. Использовался детектор без защиты с площадью фронтального активного окна $0,23 \text{ м}^2$. Для достижения максимальной чувствительности к низкоэнергетическим нейтронам были удалены кадмиевые поглотители. Преимуществом использования нейтронных методик по сравнению с методиками на основе гамма-излучения является то, что проблема экранирования не столь важна, а отражение нейтронов в объеме помещения (нейтроны рассеиваются поверхностями помещения) ведет к возрастанию отклика счетчика от материала, находящегося на краю помещения. Эти два эффекта уменьшают число точек измерений, необходимых для надежного контроля установки. Экраны между помещениями были хорошими и, следовательно, перенос излучения между помещениями не создавал проблем. Поскольку химическая и изотопная формы плутония были известны, можно было определить зависимость отклика детектора от количества граммов плутония. Отклик детектора был усреднен по нескольким измерительным позициям с целью снижения чувствительности детектора к "горячим точкам" (или для определения факта их существования). Хотя эта процедура дает результат в лучшем случае с погрешностью 50 %, такие результаты достаточны для ситуаций, когда по большой площади распределены тонким слоем несколько сотен граммов плутония.

15.4 СЧЕТЧИК С 4 π -ГЕОМЕТРИЕЙ

Счетчик с 4 π -геометрией окружает образец таким образом, чтобы телесный угол регистрации нейтронов достигал 4 π . Такая конфигурация обеспечивает максимально возможную эффективность счета и наилучшую защиту. Для снижения влияния ненаправленного фонового нейтронного излучения на всех внешних поверхностях детектора может быть размещена защита. Анализируемый образец помещается в центральный колодец или камеру для образца. Обычно конструкция счетчика с 4 π -геометрией разрабатывается таким образом, чтобы обеспечить достаточно равномерный отклик по всему объему камеры. Это очень важно для измерения гетерогенных образцов. Большинство конструкций счетчиков с 4 π -геометрией оптимизированы для конкретного применения. Для гарантии того, что образцы имеют соответствующую высоту заполнения, состав и матрицу, требуется административный контроль. Если характеристики образцов хорошо известны и согласуются с характеристиками переноса нейтронов, легко получить результаты анализа с неопределенностью, не превышающей нескольких процентов.

Электроника счетчика с 4π -геометрией схожа с электроникой плоских детекторов. Обычно используется от четырех до шести сборок нейтронных детекторов, выходы которых объединяются для получения скорости счета полного потока нейтронов. При добавлении схемы совпадений та же самая конфигурация может использоваться и для счета совпадений. Процесс регистрации полного потока нейтронов или нейтронных совпадений обычно автоматизирован с использованием калькулятора или компьютера. Компьютер может быть запрограммирован и осуществлять контроль электроники счетчика, преобразование отклика в результате измерения массы с использованием градуировочной зависимости и обеспечение контроля измерений.

15.4.1 Счетчик для контейнеров

На рис.15.5 показана конструкция счетчика с 4π -геометрией, используемого в Объединенной ядерной корпорации UNC (United Nuclear Corporation) в Ричланде, штат Вашингтон, [14] для измерения концевых обрезков в процессе экстракционного изготовления топлива. Концевые обрезки состоят по крайней мере на 75 % из низкообогащенного урана, а также из циркония и меди. Они упаковываются в большие транспортные контейнеры и загружаются в счетчик с помощью "вилочного лифта". Обычный вес нетто образцов составляет 320 кг, однако он может достигать 550 кг. По нескольким причинам в корпорации UNC предпочтение отдали методу регистрации полного потока нейтронов вместо регистрации совпадений. Метод регистрации полного потока нейтронов менее чувствителен к эффектам размножения нейтронов, возникающим при вынужденном делении ^{235}U .

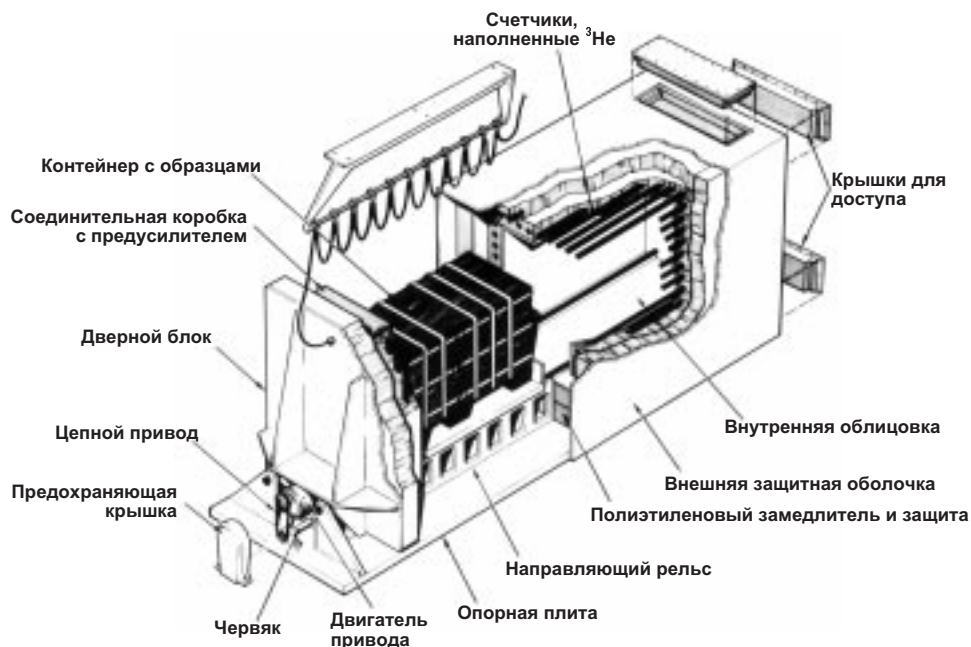


Рис.15.5. Счетчик для контейнеров, используемый в Объединенной ядерной корпорации (UNC)

Метод менее чувствителен к пространственным эффектам изменения эффективности регистрации внутри измерительной камеры. Скорость счета совпадений от ^{238}U достаточно низка и составляет от 0,2 до 0,5 от скорости счета совпадений, вызванных космическим излучением. Метод регистрации полного потока обеспечивает скорость счета, превышающую в 10 раз скорость счета совпадений. При этом легко осуществлять административный контроль нахождения в счетчике только необходимых образцов.

Наблюдаемый сигнал от концевых обрезков обусловлен, в основном, спонтанным делением ^{238}U . Один килограмм ^{238}U испускает 13,6 н/с. Внутренняя поверхность камеры для образца облицована кадмием. В этих условиях полная эффективность для нейтронов источника AmLi, размещенного в центре камеры, равна 20 %. Внешняя защита состоит из полиэтилена толщиной 10,2 см. Независимые измерения с плоским счетчиком показали, что полиэтиленовая защита снижает сигнал фона от топлива, хранящегося в соседнем помещении, в 25 раз. Кроме того, административный контроль ограничивает количество урана, находящегося вне счетчика. Ни один контейнер не может находиться ближе, чем на расстоянии 2,4 м от счетчика, допускается размещение только одного контейнера ближе, чем 15 м. Счетчик полностью автоматизирован, а пользователь работает с компьютером Hewlett Packard HP-85. Принята ежедневная процедура контроля нормального функционирования счетчика. Она включает измерение фона, который должен быть ниже, чем отклик от 11 эффективных килограммов урана, и анализ стандартного образца. При этом результаты измерений для стандартного образца должны находиться в пределах 2 % от заданного значения.

На рис. 15.6 представлена градуировочная кривая, полученная с использованием образцов конечного продукта процесса экстракции. Времена счета выбира-

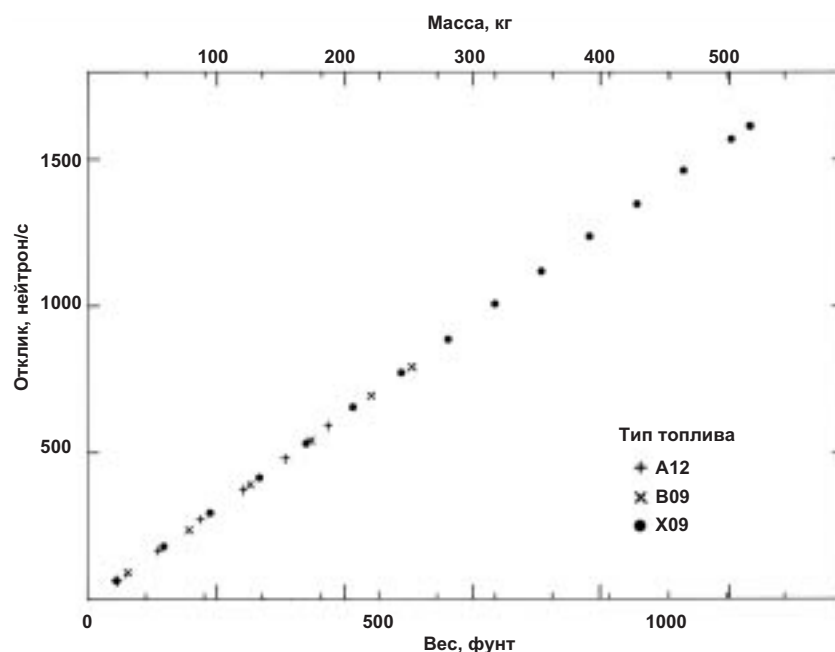


Рис. 15.6. Данные градуировки счетчика для контейнеров корпорации UNC, показывающие зависимость отклика нейтронов от массы топлива

лись равными 1000 с; при этом статистическая сходимость результатов измерений была лучше, чем 1 %. Для градуировки использовались три типа топлива: материал с обогащением 0,947 % в цилиндрах диаметром 6 см (на рис. помечен значками «+»); материал с обогащением 0,947 % в цилиндрах диаметром 3 см, так что плотность упаковки в два раза больше (на рис. помечен кружочками); и материал с обогащением 1,25 % в цилиндрах диаметром 6 см (на рис. помечен значками «x»). Для материала с обогащением 1,25 % использовались два различных транспортных контейнера, вес которых различался на 20 %. Отклик от более тяжелого контейнера был на 2 % ниже, чем отклик от более легкого контейнера. Точность анализа в настоящее время ограничивается 2-3 %, что обусловлено различиями в транспортных контейнерах. Исследование эффектов матрицы показывает, что неопределенность, обусловленная этими эффектами, составит 1 % или меньше. Предварительное сравнение с результатами анализа концевых обрезков, которые были растворены после проведения измерений, показало смещение результатов менее 1 %.

15.4.2 Измерение источников теплоты на основе ^{238}Pu

Для анализа источников теплоты на основе ^{238}Pu в Лос-Аламосе был разработан небольшой счетчик с 4π-геометрией [15]. Источники теплоты представляют собой капсулы весом 10 г, содержащие $^{238}\text{PuO}_2$. Плутоний обогащен до 83 % по ^{238}Pu , а кислород высоко обогащен по ^{16}O . Теплота образуется при испускании альфа-частиц в процессе распада ^{238}Pu . Высокая скорость испускания альфа-частиц может также привести к высокой скорости образования нейтронов в результате (α,n)-реакции на ядрах изотопов ^{17}O и ^{18}O , несмотря на обеднение кислорода по ^{17}O и ^{18}O . Количественный анализ ^{238}Pu затруднен вследствие того, что точное оставшееся количество изотопов ^{17}O и ^{18}O неизвестно. Однако основная цель измерений состоит в том, чтобы убедиться в значительном снижении скорости испускания нейтронов из (α,n)-реакции. На плутониевой установке в Лос-Аламосе изготовление $^{238}\text{PuO}_2$ производится отдельно от других материалов. Двоукись подвергается специальной обработке, которая обеспечивает более уникальные характеристики тепловыделения в легко обнаруживаемых количествах. Таким образом, легко реализуется административный контроль измерения именно $^{238}\text{PuO}_2$.

Счетчик для источников теплоты показан на рис. 15.7. Его конструкция достаточно традиционна и состоит из полиэтиленового замедлителя высокой плотности, кадмиевого поглотителя, ^3He -счетчиков, внешней алюминиевой оболочки и держателя для образца из нержавеющей стали и алюминия для размещения источника теплоты в центральной полости во время измерения. Для снижения высокой скорости счета фона, ожидаемой в производственном помещении, используется полиэтиленовая защита толщиной 10 см. Эффективность счетчика составляет 18 %. Сходимость результатов измерений, равная 0,5 % или лучше, достигается за время измерения 100 с. Погрешность измерения составляет 1 % для одной партии материала и 5 % для разных партий. Большинство расхождений между партиями обусловлено различным изотопным составом кислорода.

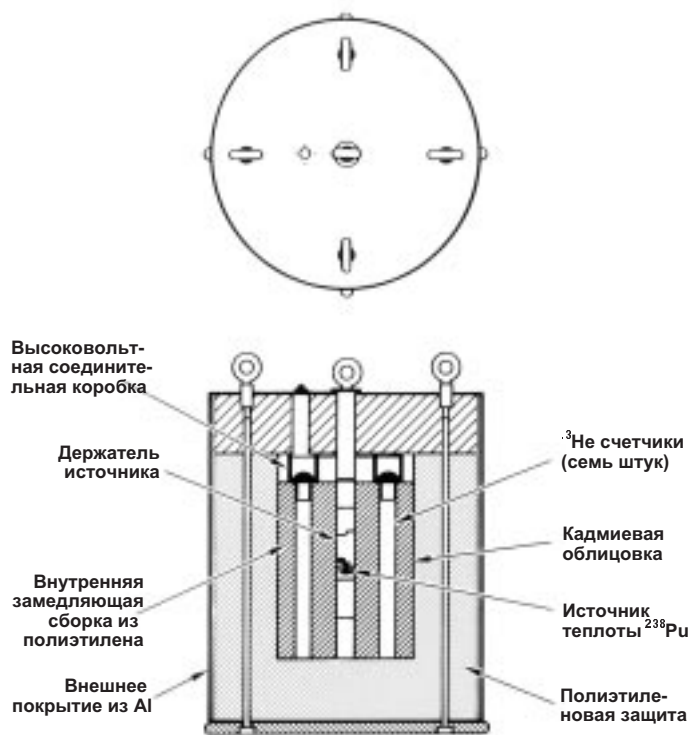


Рис. 15.7. Счетчик с 4π-геометрией для источников теплоты на основе ^{238}Pu [15]

15.5 ИЗМЕРЕНИЕ НИЗКОАКТИВНЫХ ОТХОДОВ

Пассивный счет нейтронов часто используется для измерения отходов ядерных материалов, поскольку нейтроны могут проникать сквозь большие контейнеры с отходами гораздо лучше, чем гамма-излучение, особенно, если отходы содержат плотные материалы с высоким Z . Объем контейнеров с отходами обычно составляет 55 и более галлонов (около 200 л), и использование пассивных детекторов гамма-излучения дает занижение оценки количества ядерного материала, обусловленное поглощением гамма-излучения в матрице. С другой стороны, использование нейтронных измерений приводит к переоценке количества ядерного материала; "дополнительные" нейтроны образуются за счет (α, n) -реакций в матрице или за счет замедления с последующим вынужденным делением. Регистрация нейтронных совпадений может существенно снизить эту чувствительность к эффектам матрицы путем дискриминации между нейтронами деления источника и нейтронами, возникшими в результате (α, n) -реакции в матрице. Однако регистрация полного потока нейтронов может оказаться более чувствительной к небольшим количествам ядерного материала, особенно если (α, n) -реакции увеличивают скорость испускания нейтронов. Например, метод регистрации полного потока нейтронов на несколько порядков более чувствителен при анализе фторидов PuF_4 или UF_6 . Метод регистрации полного потока нейтронов часто используется скорее для качественного анализа, чем для количественного.

15.5.1 Чувствительность регистрации

В табл. 14.2, 14.3 и 14.4 (см. главу 14) приведены интенсивности испускания нейтронов некоторых наиболее распространенных ядерных материалов. Из этих таблиц видно, что в материалах с низким Z в результате (α, n) -реакций выход нейтронов значительно возрастает. Поскольку выход нейтронов для соединений плутония гораздо выше, чем выход нейтронов для соединений урана, чувствительность метода регистрации полного потока нейтронов к плутонию гораздо выше, чем к урану. В данном случае чувствительность анализа определяется как отношение $\Delta C/C$, где ΔC представляет собой погрешность величиной в одно стандартное отклонение числа отсчетов C .

При измерении низкоактивных отходов важным параметром является порог обнаружения, который представляет собой такое количество материала, которое вызывает отклик детектора, превышающий фон в $d = C/\Delta C$ раз. При скорости счета фона b , гораздо меньшей скорости счета полезного сигнала, порог обнаружения m (в граммах) дается выражением

$$m = d^2 / At_1. \quad (15.7)$$

Для скорости счета фона b , много большей скорости счета полезного сигнала,

$$m = \frac{d}{A} \sqrt{\frac{b}{t_1} + \frac{b}{t_2}}, \quad (15.8)$$

где A — скорость счета прибора, измеряемая в числе отсчетов в секунду на грамм; t_1 и t_2 — время измерения сигнала и фона, соответственно.

Порог обнаружения при превышении сигналом 3σ над фоном ($d = 3$) составляет 23 мг для плутония низкого выгорания, 0,5 мг для PuF_4 , 170 г для урана естественного обогащения и 30 г для UF_6 естественного обогащения [16]. Эти расчеты приведены для времени измерения 1000 с в большом счетчике с 4π -геометрией с абсолютной эффективностью 15 %. Счетчик с 4π -геометрией рекомендуется для анализа отходов низкой активности вследствие небольшой интенсивности испускания нейтронов и гетерогенной природы отходов.

Анализ результатов расчета порогов обнаружения показывает, что пассивный счет нейтронов от низкоактивных отходов обычно практически применим только к плутонию. Для 55-галонных контейнеров, содержащих 100 кг материала с непоглощающей матрицей, порог обнаружения плутония, равный 23 мг, соответствует удельной активности примерно 23 нКи/г. Это значение предела обнаружения легко может возрасти на порядок для реальных контейнеров, в которых содержатся значительные количества замедлителей или поглотителей нейтронов. Однако в большинстве случаев использование пассивного нейтронного анализа дает завышенную оценку количества наличного ядерного материала, что обусловлено (α, n) -реакциями в матрице. Если химический и изотопный составы отходов неизвестны, то не может быть выполнено никакой количественной оценки содержания ядерных материалов в контейнере, кроме оценки верхнего предела.

15.5.2 Анализ 55-галонных бочек

В Лос-Аламосе был исследован метод регистрации полного потока нейтронов для 55-галонных (200-литровых) бочек, содержащих отходы, загрязненные PuO_2 [17]. Измерялся набор из 17 стандартных образцов, изготовленных на пред-

приятии по переработке плутония в Рокки Флэтс [18]. Стандартные образцы предназначались для моделирования загрязненных технологических материалов и остатков, обычно анализируемых в счетчике для бочек Рокки Флэтс. В табл. 15.2 представлены характеристики этих бочек. Для 17 бочек было получено стандартное отклонение $\pm 16\%$. Поскольку изотопный и химический составы плутония были "постоянными" и хорошо известными, сигнал регистрации полного потока нейтронов являлся приемлемой мерой содержания плутония.

15.5.3 Анализ больших упаковок

На предприятии в Рокки Флэтс был разработан и интенсивно использовался достаточно большой нейтронный счетчик для анализа упаковок с отходами размером $1,2 \times 1,2 \times 2,1$ м [19]. В этом счетчике с 4π -геометрией используются двенадцать сцинтилляционных детекторов ZnS диаметром 30 см, размещенных вокруг камеры для образца. Поскольку эти детекторы быстрых нейтронов также обладают некоторой чувствительностью к гамма-излучению, порог дискриминатора устанавливается выше 1,3 МэВ (энергия гамма-излучения ^{60}Co). При этом большая часть нейтронного сигнала также отсекается, и измеренная эффективность счетчика составляет 0,1 %. Хотя регистрируемый сигнал в основном вызван нейтронами спонтанного деления, вследствие низкой эффективности регистрации метод регистрации полного потока нейтронов является более предпочтительным, чем метод регистрации нейтронных совпадений.

Таблица 15.2 – Физические характеристики 55-галонных стандартных бочек на предприятии в Рокки Флэтс

Описание	Матрица	Состав матрицы, вес. %	Средний вес-нетто матрицы, кг	Средняя плотность матрицы, г/см ³	Загрузка плутонием (в виде PuO ₂), г Pu
Прессованный графит	Графит зернистостью 60 меш	100	110	0,53	60; 145; 195
Сухая органика	Углерод	90	24	0,12	10; 165; 175
	Пластмасса	5			
Влажная органика	Целлюлоза	5	51	0,25	28,5; 166
	Вода	80			
	Пластмасса	15			
Дезактивируемые материалы	Поливинил	42	32	0,15	10; 90; 160
	Свинцовые перчатки	28			
	Полиэтилен	20			
	Целлюлоза	7			
	Хирургические перчатки	3			
Кольца Рашига	Кварцевое стекло с 12 % бора в виде B ₂ O ₃	100	82	0,39	40; 95; 185
Резина	Дувакс 1×4	100	:	:	25; 100
Бенелекс — органическое стекло	—	—	:	:	75

Основными источниками погрешности счетчика для упаковок являются непостоянство эффектов матрицы и неизвестная химическая форма плутония. Результат сравнений со счетчиком для 55-галонных бочек показывает, что измерения со счетчиком для упаковок дают завышенную оценку содержания плутония. Типичная загрузка упаковки составляет менее 100 г плутония; время измерения обычно составляет 200 с. Результаты измерений обычно согласуются с целевыми значениями в пределах коэффициента 4.

Счетчик для упаковок используется для отбора упаковок, которые необходимо вскрыть и проверить более тщательно. Периодически счетчик обнаруживает упаковки, которые были некорректно описаны в документах. Для получения более точных количественных результатов измерения объединяются с методом пассивного гамма-счета.

15.6 СПЕЦИАЛЬНЫЕ ПРИМЕНЕНИЯ

Специальные применения, описанные в этом разделе, связаны с энергетическим спектром нейтронного излучения, наблюдаемым с помощью некоторых приборов пассивного анализа. В первых двух примерах наблюдаемый энергетический спектр используется для определения специфических характеристик образца.

15.6.1 Анализатор водорода на основе источника ^{252}Cf

Анализатор водорода на основе источника ^{252}Cf (рис. 15.8) может определять содержание водорода в небольших образцах урана путем измерения смягчения нейтронного спектра близко расположенного источника ^{252}Cf [20]. Анализатор состоит из стального блока с отверстиями, высверленными для фиксации двух никелевых цилиндров диаметром 76 мм. В одном из цилиндров находится источник ^{252}Cf , а в другом — образец и два нейтронных детектора на основе ^3He , что подробно показано на рис. 15.9. Для образцов, содержащих водород, скорость счета нейтронов возрастает, поскольку ^3He -счетчики обладают более высокой эффективностью для нейтронов низких энергий. Этот эффект матрицы усиливается, если вместо полиэтиленовых замедлителей вокруг образца и детекторов разместить стальные отражатели.

Электроника счета импульсов состоит только из одноканального анализатора. Использование достаточно мощного калифорниевского источника, обеспечивающего скорость счета порядка 10 кГц, дает сходимость результатов, равную 0,1 %, при вполне приемлемом времени измерения 100 с. За трехдневный период наблюдался временной дрейф в 0,3 %. Однако в реальности данные получают при измерении образца, перед которым или после которого выполняются измерения фона. Таким образом, наличие временных дрейфов не является проблемой.

На рис. 15.10 представлен отклик анализатора (разность между числом отсчетов от образца и фона) в зависимости от содержания водорода. Прямая линия представляет собой подгонку данных методом наименьших квадратов. Четыре образца, указанные на графике, имели графитовую матрицу и одинаковый объем. На рис. 15.11 показано влияние увеличения содержания изотопа ^{235}U на отклик анализатора водорода. Анализатор водорода первоначально был предназначен к использованию вместе с системой анализа небольших образцов SSAS (Small Sam-

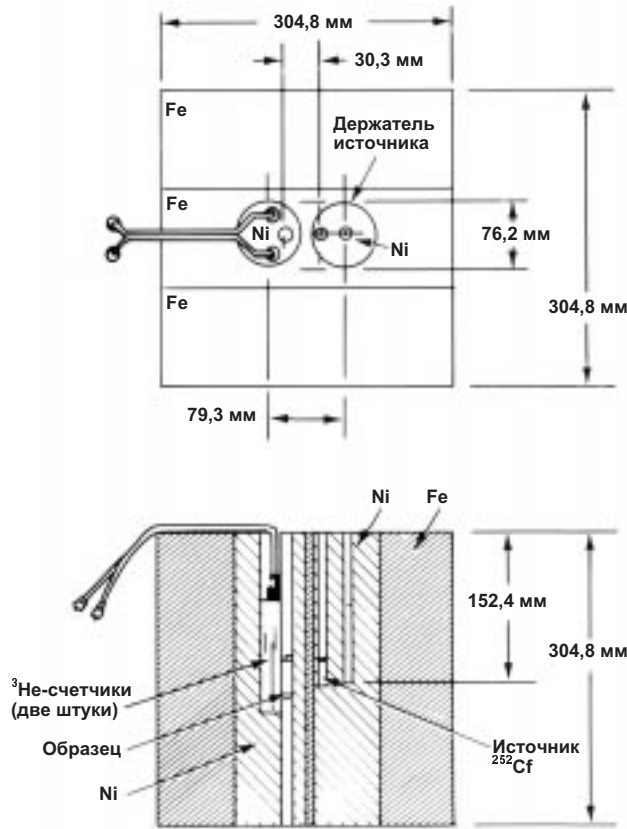


Рис. 15.8. Анализатор водорода на основе источника ^{252}Cf

ple Assay System) [21] для определения содержания урана во влажных урановых ТВЭЛлах. Система SSAS определяет содержание урана, но результат измерения зависит от содержания водорода. Поэтому, для получения более точных результатов анализа используется процедура итераций. Сначала с системой SSAS проводят измерения содержания урана с погрешностью примерно $\pm 10\%$. Затем с помощью анализатора водорода определяют содержание водорода с погрешностью

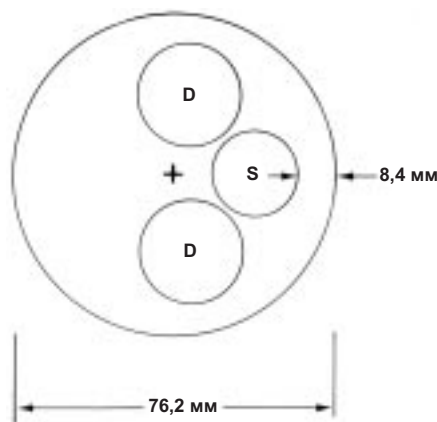


Рис. 15.9. Геометрия образец-источник в анализаторе водорода на основе источника ^{252}Cf (масштаб увеличен). Диаметр детекторов D составляет 25 мм, а камеры для образца S — 19 мм

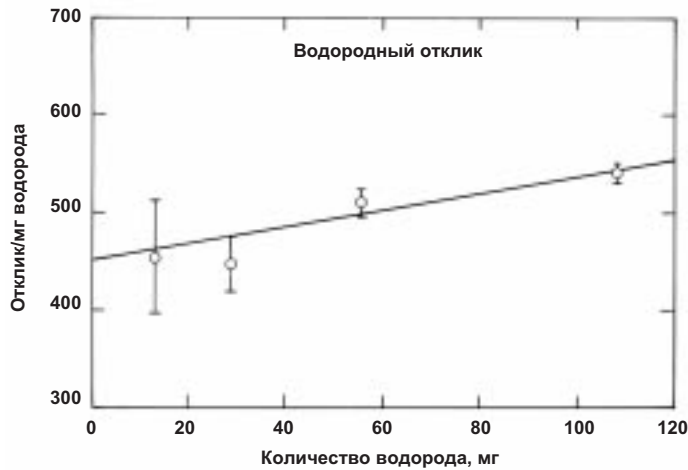


Рис. 15.10. Зависимость отклика на миллиграмм водорода от содержания водорода

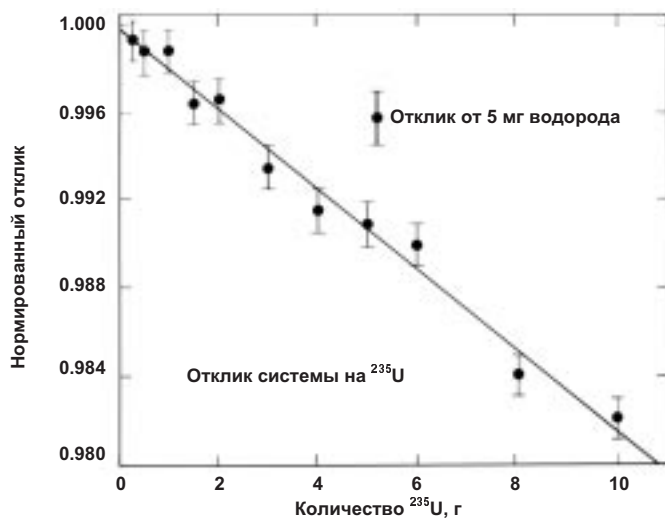


Рис. 15.11. Влияние ^{235}U на анализатор водорода

до ± 2 мг. Окончательно в результаты измерений SSAS вводится поправка, с учетом которой содержание ^{235}U определяется с погрешностью не более 1 %.

15.6.2 Определение влажности с помощью кольцевого отношения детектора

Отношение полных чисел нейтронных отсчетов во внутреннем и внешнем кольцах детектора двухкольцевого счетчика с 4π -геометрией является мерой энергетического спектра нейтронов. Аналогично анализатору водорода на основе источника ^{252}Cf , отношение числа отсчетов в кольцах может давать информацию о содержании влаги в образце.

Эта методика контроля влажности была применена для анализа влажного оксалата плутония [22, 23]. В процессе конверсии нитрата плутония в оксид оксалат выпадает в осадок. Он является гетерогенным и обычно содержит от 30 до

65 вес. % воды. Анализ плутония осуществляется с помощью метода пассивной регистрации нейтронных совпадений, однако, введение поправки на содержание воды осуществляется с использованием отношения числа отсчетов в кольцах. Такая поправка необходима, поскольку водород является лучшим замедлителем, чем оксид плутония, и образцы с более высоким содержанием воды в большей степени снижают среднюю энергию нейтронов. Нейтронный счетчик состоит из внутреннего кольца детекторов, отделенного от образца полиэтиленом толщиной 11 мм, и внешнего кольца, отделенного полиэтиленом толщиной 33 мм. Вследствие разной толщины слоя полиэтилена для счетчиков разных колец изменение энергетического спектра нейтронов влияет на отклик обоих колец по-разному.

Счетчик был отградуирован при анализе 19 образцов с известным содержанием плутония и воды. Масса плутония m была представлена в виде

$$m = aR_o^{(\alpha+\beta T_i/T_o)}, \quad (15.9)$$

где R_o — скорость счета совпадений во внешнем кольце;

T_i — полная скорость счета во внутреннем кольце;

T_o — полная скорость счета во внешнем кольце;

a, α, β — параметры подгонки.

Дополнительно 22 образца были проанализированы неразрушающим методом со стандартным отклонением 2,2 % (1σ) [22] относительно результатов последующего разрушающего анализа. Без введения поправки на влажность с использованием отношения числа отсчетов в кольцах отклонение составляет от 50 до 100 %.

15.6.3 Энергетически независимый "длинный" счетчик

В области исследования быстрых нейтронов существует множество областей применения для счетчика, эффективность регистрации которого не зависит от энергии падающих нейтронов. Одним из таких счетчиков, используемых для градуировки и стандартизации приборов нейтронного анализа, является "длинный" (всеволновой) счетчик [10, 24]. Эффективность регистрации всеволнового счетчика в широком диапазоне энергий почти постоянна, однако не полностью энергетически независима, как иногда считается.

На рис. 15.12 показаны характеристики конструкции высокоэффективного всеволнового счетчика. Нейтронный источник располагается на оси ^3He -детектора на расстоянии не менее 1 м от торца. Для достижения постоянного энергетического отклика существенными являются минимальное расстояние между источником и детектором, количество и расположение отверстий в замедлителе и конструкция полиэтиленового кольца перед замедлителем. На рис. 15.13 [10] показан отклик счетчика от нейтронных источников в широком энергетическом диапазоне. Относительные мощности источников были известны с точностью 3 %. В пределах точности мощности источника, отклик счетчика постоянен в диапазоне от 0,024 МэВ до более, чем 4 МэВ. Последние данные (рис. 15.14) для этого счетчика были получены с использованием ускорителя Ван-де-Граафа, обеспечивающего относительно моноэнергетический поток нейтронов реакции $^7\text{Li}(p,n)^7\text{Be}$ [25]. При изменении энергии нейтронов от 100 до 1200 кэВ наблюдался неболь-

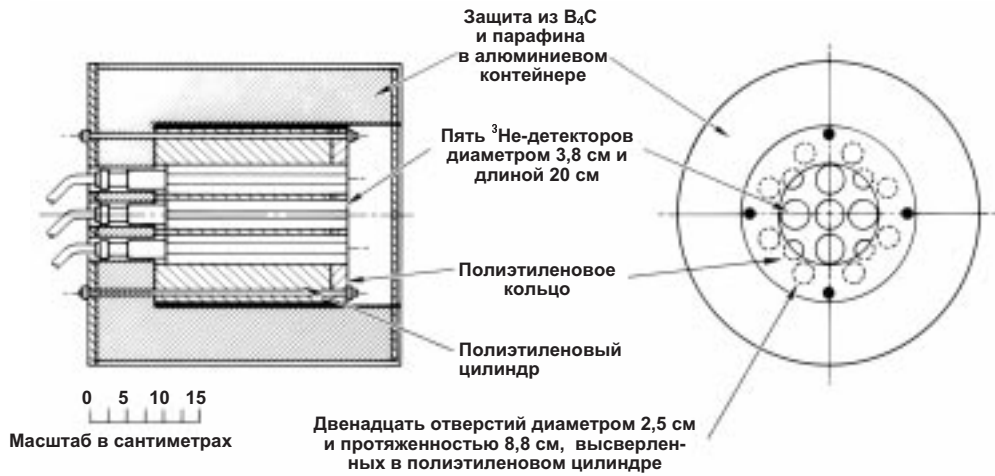


Рис. 15.12. Высокоэффективный всеволновой счетчик на основе ³He

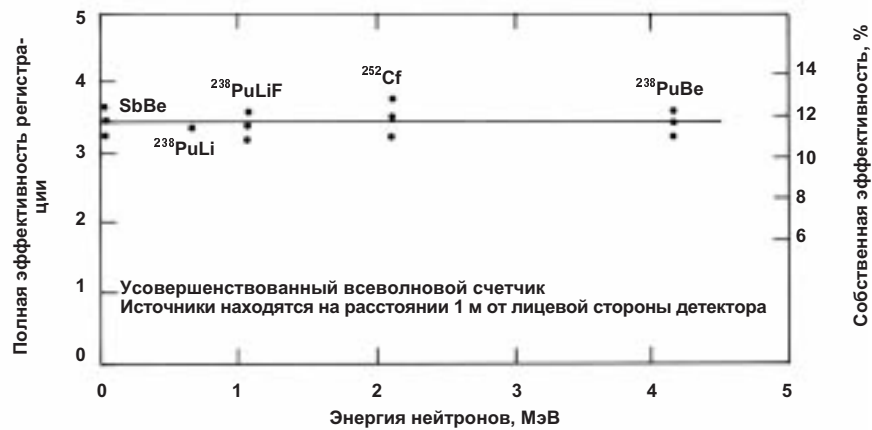


Рис. 15.13. Зависимость эффективности ³He всеволнового счетчика от энергии нейтронов, определенная с помощью радиоактивных источников

шой резонанс при энергии 450 кэВ. Очевидно, отклик всеволнового счетчика не является полностью энергетически независимым, а только приблизительно такой.

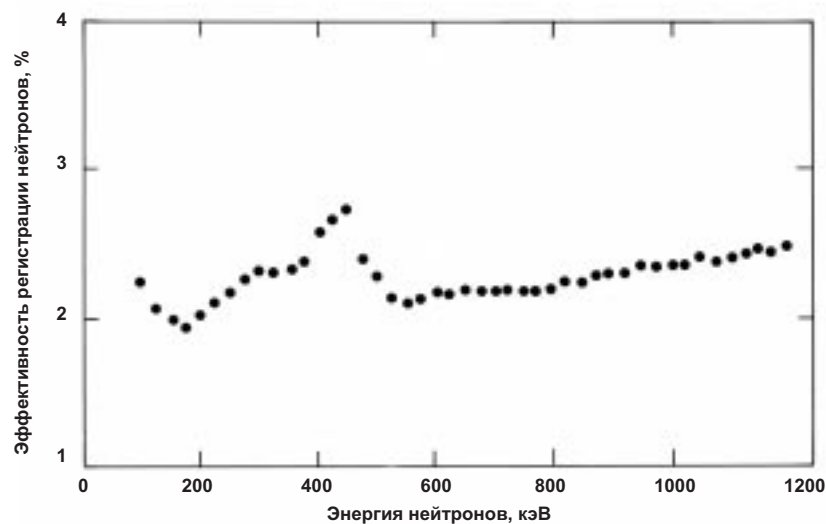


Рис. 15.14. Зависимость эффективности ^3He всеволнового счетчика от энергии нейтронов, определенная с помощью моноэнергетических нейтронов

ЛИТЕРАТУРА

1. H.O. Menlove, T.L. Atwell, and A. Ramalho, "Upgrading of SNAP Neutron Detector, SNAP-II", in "Nuclear Safeguards Research Program Status Report, September-December 1975", Los Alamos Scientific Laboratory report LA-6316-PR (April 1976), pp.5-6.
2. R.B. Walton and T.L. Atwell, "Portable Neutron Probe, "SNAP"", in "Nuclear Analysis Research and Development Program Status Report, January-April 1973", Los Alamos Scientific Laboratory report LA-5291-PR (May 1973), p.14.
3. T.L. Atwell, D.B. Smith, and A.C.Walker "Assay of Plutonium Metal Buttons with a Portable Neutron Counter" in "Nuclear Analysis Research and Development Program Status Report, May-August 1973", Los Alamos Scientific Laboratory report LA-5431-PR (November 1973), pp.20-23.
4. R.B. Walton, T.D. Reilly, J.L. Parker, J.H.Menzel, E.D. Marshall, L.W. Fields, "Measurement of UF_6 Cylinders with Portable Instruments", *Nuclear Technology* 21, 133 (1974).
5. NRC Guide 5.23, "In-Situ Assay of Plutonium Residual Holdup", Rev.1 (February 1984).
6. C. Kindle, "In-Situ Measurement of Residual Pu", *Nuclear Materials Management* V, 540 (1976).
7. R.B. Walton, "The Feasibility of Nondestructive Assay Measurements in Uranium Enrichment Plants", Los Alamos Scientific Laboratory report LA-7212-MS (April 1978).

8. J.T. Caldwell, S.W. France, R.D. Hastings, J.C. Pratt, E.R. Shunk, T.H. Kuckertz, and R. Goin, "Neutron Monitoring of Plutonium Storage Vaults", in "Nuclear Safeguards and Development Program Status Report, October 1980-January 1981", C.N. Henry, Comp., Los Alamos National Laboratory report LA-8870-PR (November 1981), pp.21-28.
9. E.J. Dowdy, A.A. Robba, and R.D. Hastings, "Power Reactor Monitor", in "Nuclear Safeguards Research and Development Program Status Report, May-August 1978", S.D. Gardner, Ed., Los Alamos Scientific Laboratory report LA-7616-PR (April 1979), pp.58-60.
10. L.V. East and R.B. Walton, "Polyethylene Moderated ^3He Neutron Detectors", *Nuclear Instruments and Methods* 72, 161 (1969).
11. J.E. Stewart, S.C. Bourret, R.W. Slice, J.T. Markin, C.A. Coulter, and C.A. Spirio, "An Area Neutron-Monitoring Strategy for International Inspections at Centrifuge Enrichment Plants", in "Safeguards and Security Status Report, February-July 1982", Los Alamos National Laboratory report LA-9595-PR (February 1982), pp.53-56.
12. J.T. Markin, J.E. Stewart, and A.S. Goldman, "Data Analysis for Neutron Monitoring in an Enrichment Facility", European Safeguards Research and Development Association Specialists' Meeting, Petten, The Netherlands, April 27-29, 1982, Los Alamos National Laboratory document LA-UR-81-2304.
13. J.W. Tape, D.A. Close, and R.B. Walton, "Total Room Holdup of Plutonium Measured with a Large-Area Neutron Detector", *Nuclear Materials Management* V (3), 533 (1976).
14. J.K. Sprinkle, Jr., and M.M. Stephens, "End-Crop Box Counter Manual", Los Alamos National Laboratory report LA-9781-M (June 1983).
15. C.O. Shonrock, L.G. Speir, P.R. Collinsworth, and N. Ensslin, "Neutron Counter for ^{238}Pu Heat Source Program", in "Nuclear Safeguards Research and Development Program Status Report, April-June 1980", Los Alamos Scientific Laboratory report LA-8514-PR (February 1981), pp.5-6.
16. T. Crane, "Measurement of Uranium and Plutonium in Solid Waste by Passive Photon or Neutron Counting and Isotopic Neutron Source Interrogation", Los Alamos Scientific Laboratory report LA-8294-MS (March 1980).
17. T.D. Reilly and M.M. Thorpe, "Neutron Assay of 55-Gallon Barrels", in "Nuclear Safeguards Research and Development Program Status Report, May-August 1970", Los Alamos Scientific Laboratory report LA-4523-MS (September 1970), pp.26-29.
18. L. Doher, "A Measurement Control Scheme for Plutonium Counting Systems", Proc. Institute of Nuclear Materials Management Annual Meeting, Gatlinburg, Tennessee (May 1970).
19. R. Harlan, "U and Pu Assay of Crated Waste by Gamma-ray, Singles Neutron, and Slow Neutron Coincidence Counting", *Measurement Technology for Safeguards and Materials Control*, T.R. Canada and B.S. Carpenter, Eds. (NBS Special Publication 582, 1980).
20. D.A. Close, R.C. Barse, and H.O. Menlove, " ^{252}Cf -based Hydrogen Analyzer", *Nuclear Instruments and methods* 136, 131 (1976).

21. A.E. Evans, Jr., *IEEE Transactions on Nuclear Science* 21 (1), 628 (1974).
22. T.W. Crane, "Calibration of a Neutron Coincidence Counter for Measurement of the Plutonium Content of Wet Oxalate Cakes", Los Alamos National Laboratory report LA-9744-MS (April 1983).
23. R.S. Marshall and T.R. Canada, "An NDA Technique for the Assay of Wet Plutonium Oxalate", *Nuclear Material Management* 107-113 (1980).
24. W.D. Allen, *Fast Neutron Physics*, J.B. Marson and J.L. Fowler, Eds. (Interscience Publications, 1960), Vol.I, p.361.
25. A.E. Evans, Jr., "Energy Dependence of the Response of a ^3He Long Counter", *Nuclear Instruments and Methods* 199, 643 (1982).

Глава 16

Принципы регистрации нейтронных совпадений

*Н. Энслин
(Переводчик В. В. Свиридова)*

16.1 ВВЕДЕНИЕ

Определение содержания урана и плутония в объемных образцах металла, оксидов, смешанного уран-плутониевого оксидного топлива, ТВЭЛ, ТВС и т.д. часто может проводиться без разрушения образца с помощью регистрации нейтронных совпадений. Эта мощная методика основана на том, что нейтроны спонтанного или вынужденного деления испускаются практически одновременно. Во многих случаях можно получить почти уникальную характеристику для конкретного ядерного материала. Измерение может выполняться при наличии нейтронного фона в том помещении, где проводятся измерения, и нейтронов (α, n)-реакций, т.к. эти нейтроны являются некоррелированными или случайными во времени.

В табл. 11.1 главы 11 приведены значения выходов нейтронов спонтанного деления и значения множественности (среднего количества нейтронов на один акт деления) для многих изотопов, встречающихся в ядерном топливном цикле. Из таблицы видно, что изотопы ^{238}Pu , ^{240}Pu и ^{242}Pu имеют большие значения выхода нейтронов спонтанного деления. Для урана значения выхода нейтронов невелики, однако образцы, содержащие килограммовые количества ^{238}U , будут иметь измеримые значения выхода. При спонтанном делении ядер обычно одновременно испускается более одного нейтрона, поэтому прибор, который чувствителен только к нейтронным совпадениям, будет чувствителен только к таким изотопам. Содержание этих изотопов может быть определено даже тогда, когда химический состав материала таков, что возможно образование дополнительных одиночных нейтронов за счет (α, n)-реакций. Тогда, если изотопный состав материала известен, может быть рассчитано полное содержание урана и плутония.

Для плутониевого образца, содержащего ^{238}Pu , ^{240}Pu и ^{242}Pu , наблюдаемый отклик нейтронных совпадений будет обусловлен всеми тремя изотопами. Однако вклад ^{240}Pu обычно является доминирующим как в плутонии низкого выгорания (~6 % ^{240}Pu), так и в реакторном плутонии высокого выгорания (от ~15 до ~25 % ^{240}Pu). В связи с этим при регистрации нейтронных совпадений удобно ввести понятие эффективной массы ^{240}Pu , как:

$$^{240}\text{Pu}_{\text{эфф}} = 2,52^{238}\text{Pu} + ^{240}\text{Pu} + 1,68^{242}\text{Pu} \quad (16.1)$$

$^{240}\text{Pu}_{\text{эфф}}$ — это такое значение массы ^{240}Pu , которое вызвало бы точно такой же отклик нейтронных совпадений, который был бы получен от всех четных изотопов в реальном образце. Обычно содержание $^{240}\text{Pu}_{\text{эфф}}$ превышает действительное содержание ^{240}Pu на величину от 2 до 20 %. Коэффициенты 2,52 и 1,68 в уравне-

нии (16.1) определяются следующими факторами: а) соотношениями периодов полураспада спонтанного деления каждого изотопа (табл. 11.1); б) соотношениями распределений множественности нейтронов спонтанного деления каждого изотопа (табл. 11.2); а также в) способом получения этих значений множественности с помощью схем анализа совпадений (см., например, [1]). Значения относительных выходов нейтронов спонтанного деления играют определяющую роль. Коэффициенты, приведенные выше, справедливы для схемы анализа совпадений типа сдвигового регистра, который будет описан ниже в этой главе, и их значения для других схем изменяются совсем незначительно.

Наиболее распространенным методом регистрации нейтронных совпадений является пассивный метод регистрации нейтронов спонтанного деления. Однако, поскольку деления могут быть вынужденными, в частности, для таких изотопов как ^{239}Pu и ^{235}U , образцы, содержащие большие количества делящихся изотопов, можно анализировать с помощью регистрации совпадений нейтронов вынужденного деления. Отклик совпадений от вынужденного деления будет являться количественной оценкой содержания этих изотопов в образце. Если вынужденные деления вызваны источником (α, n) -нейтронов, схема анализа совпадений может выделить коррелированные нейтроны деления на фоне некоррелированных нейтронов источника.

Пассивные и активные счетчики нейтронных совпадений широко применяются в американской и международной системах гарантий (см. главу 17). Счетчики нейтронных совпадений обычно дают более точные результаты, чем радиометры нейтронов (приборы регистрации полного потока нейтронов), поскольку они нечувствительны к одиночным нейтронам (α, n) -реакций или нейтронам внешнего фона. Однако измерение полной скорости счета нейтронов может давать информацию, которая дополняет информацию совпадений. Для многих типов ядерного материала в общем случае полезно измерять как скорость счета совпадений, так и полную скорость счета нейтронов.

16.2 ХАРАКТЕРИСТИКИ ПОСЛЕДОВАТЕЛЬНОСТИ НЕЙТРОННЫХ ИМПУЛЬСОВ

Для понимания механизма регистрации совпадений полезно рассмотреть последовательность электрических импульсов, произведенных детектором нейтронов. Эти электрические импульсы, каждый из которых образовался при регистрации одного нейтрона, поступают на вход схемы анализа совпадений. Эти входные импульсы можно рассматривать либо как распределение событий во времени, либо как распределение временных интервалов между событиями в зависимости от того, что более удобно. В любом случае наблюдаемое распределение является результатом некоторой комбинации событий, вызванных спонтанными делениями, вынужденными делениями, (α, n) -реакциями, и внешним фоном. Как упоминалось в разделе 16.1, при делении обычно образуется несколько нейтронов, которые коррелированы или совпадают во времени, в то время как нейтроны (α, n) -реакции и внешнего фона случайно распределены во времени или не коррелированы.

16.2.1 Идеальные и действительные последовательности импульсов

Пример идеальной последовательности импульсов, содержащей коррелированные и некоррелированные события, показан на рис. 16.1 (а). Действительная последовательность импульсов, регистрируемая с помощью обычного счетчика совпадений, будет более сложной, как показано на рис. 16.1 (б). Это происходит потому, что конструкция счетчика нейтронных совпадений оказывает влияние на последовательность импульсов.

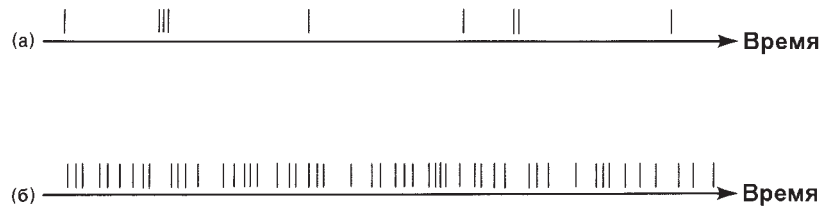


Рис. 16.1. Последовательность нейтронных импульсов на временной оси. (а) Идеализированная последовательность импульсов, содержащая коррелированные и некоррелированные события. (б) Действительная последовательность импульсов, наблюдаемая при высоких скоростях счета с использованием детектора с типичными значениями эффективности и времени жизни нейтронов

Во-первых, в измерительный колодец счетчика нейтронных совпадений могут помещаться большие образцы. Так, один килограмм плутония, содержащий 20 % ^{240}Pu , испускает около 200000 нейтрон/с. При эффективности счетчика нейтронных совпадений, составляющей 20 %, полная скорость счета нейтронов будет равна 40000 нейтрон/с, а средний интервал времени между зарегистрированными событиями составит 25 мкс. Во-вторых, обычное для счетчика совпадений нейтронов значение эффективности регистрации $\varepsilon = 20\%$ существенно меньше, чем 100 %, поэтому большая часть испущенных нейтронов не будет зарегистрирована. Большая часть событий спонтанного деления также не будет зарегистрирована. Если число испущенных нейтронов при одном делении равно n , то вероятность регистрации k нейтронов определяется следующим уравнением:

$$P(n,k) = \frac{n!}{(n-k)!k!} \varepsilon^k (1-\varepsilon)^{n-k}. \quad (16.2)$$

Если, например, испущено два нейтрона (близко к среднему значению множественности нейтронов спонтанного деления, которое для ^{240}Pu равно 2,16), тогда вероятность $P(2,0)$ не зарегистрировать ни одного нейтрона равна 0,64. Вероятность $P(2,1)$ зарегистрировать один нейтрон равна 0,32, и вероятность $P(2,2)$ зарегистрировать два нейтрона равна 0,04. Таким образом, более чем половина всех событий деления никогда не будет зарегистрирована, а большинство из них вызовет регистрацию только одного нейтрона. Вероятность регистрации действительного совпадения двух или более нейтронов одного события деления относительно мала и составляет в рассмотренном примере около 4 % от общего числа случаев. В-третьих, многие совпадения, наблюдаемые в последовательности им-

пульсов, будут обусловлены случайным перекрытием фоновых событий, событий фона и деления, или разных событий деления.

Четвертым важным фактором является конечное время термализации и затухания нейтронов в полиэтилене колодезного счетчика нейтронов. Процесс замедления и рассеяния нейтронов внутри счетчика может длиться несколько микросекунд. В любой момент этот процесс может быть остановлен поглощением нейтрона полиэтиленом, счетчиком излучения или другими материалами, а также утечкой нейтрона из детектора. Процесс может быть также продолжен за счет нейтронов вынужденного деления, что приводит к дополнительному образованию быстрых нейтронов, которые также претерпевают замедление или рассеяние перед тем, как поглотиться или покинуть детектор. Как следствие всех процессов, число нейтронов в счетчике после события спонтанного деления затухает во времени достаточно сложным образом. С хорошей точностью этот процесс может быть описан одной экспоненциальной функцией

$$N(t) = N(0)e^{-t/\tau}, \quad (16.3)$$

где $N(t)$ — число нейтронов к моменту времени t ;

τ — время затухания (среднее время жизни нейтрона в блоке детектирования).

Значения времени затухания определяются, прежде всего, размерами, формой, химическим составом и эффективностью счетчика нейтронных совпадений, а также, в незначительной степени, рассеиванием, замедлением или вынужденным делением в анализируемом образце. Для большинства конструкций счетчиков это время обычно изменяется в диапазоне от 30 до 100 мкс. Таким образом, ограниченное время затухания счетчика нейтронных совпадений приводит к тому, что регистрация мгновенных нейтронов деления растягивается до многих микросекунд. Для больших образцов и обычных счетчиков время затухания может быть сравнимым или превышать средний интервал времени между регистрируемыми событиями.

Результатом действия описанных выше четырех эффектов является то, что действительная последовательность наблюдаемых импульсов может содержать относительно малое число "действительных" совпадающих событий на фоне значительного числа "случайных" событий. Кроме того, действительные события в последовательности импульсов не будут явно отличаться от фона случайных событий, как это показано на рис. 16.1 (б). Для того чтобы визуальнo выделить и количественно определить числа действительных и случайных событий, полезно использовать либо распределение интервалов, либо распределение Росси-альфа.

16.2.2 Распределение интервалов

Распределение интервалов является распределением интервалов времени между зарегистрированными событиями. Формула для него была предложена в работе [2] и имеет следующий вид:

$$I(t) = \exp\left[-\int_0^t Q(t) dt\right], \quad (16.4)$$

где $I(t)$ — вероятность регистрации интервала времени длительностью t ;
 $Q(t)$ — вероятность регистрации второго события как функция времени, следующего после первого события, зарегистрированного в момент времени $t=0$.

При регистрации случайных нейтронов вероятность возникновения второго события является постоянной во времени. Если полная скорость счета нейтронов равна T , то нормализованное распределение интервалов имеет следующий вид: $I(t) = T \times e^{-Tt}$. В этом случае распределение интервалов представляет собой экспоненциальную функцию, и наиболее вероятно время регистрации следующего события сразу после первого события. В полулогарифмическом масштабе такое распределение будет иметь вид прямой линии. Если к случайным событиям добавляются действительные события совпадений, то распределение интервалов имеет более сложный вид [3]. На рис. 16.2 показано распределение интервалов, которое содержит как действительные, так и случайные события.

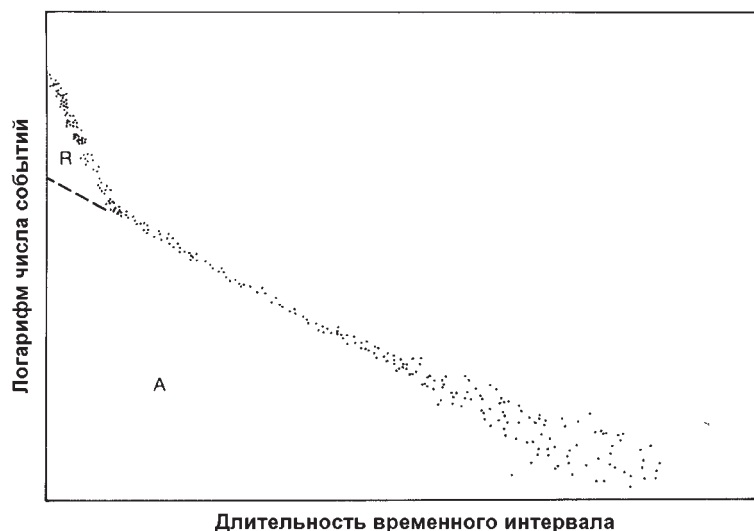


Рис. 16.2. Распределение интервалов, образованное событиями действительных совпадений R и случайных совпадений A . Наклон распределения интервалов случайных совпадений в полулогарифмическом масштабе равен полной скорости счета T

16.2.3 Распределение Росси-альфа

Другим полезным распределением, которое было разработано для анализа реакторных шумов, является распределение Росси-альфа [4]. Оно получается при запуске часов в момент времени $t=0$, когда приходит какой-либо импульс. Часы продолжают отсчитывать время, и каждый последующий импульс запоминается с помощью специальной электронной схемы в ячейке, которая соответствует времени поступления этого импульса. Типичной шириной ячейки может быть 1 мкс, а полное число ячеек времени может изменяться от 1024 до 4096. Когда достигается граница интервала полного времени, часы останавливаются и цепь не действует до тех пор, пока другое событие опять не запустит процесс в момент времени $t=0$. Таким образом, распределение Росси-альфа — это распределение во

времени событий, которые следуют после произвольного стартового импульса. Если регистрируются только случайные события, это распределение постоянно во времени. Если появляются действительные совпадающие события, распределение Росси-альфа имеет следующий вид:

$$S(t) = A + R e^{-t/\tau}, \quad (16.5)$$

где $S(t)$ — высота распределения в момент времени t ;
 A — скорость счета случайных совпадений;
 R — скорость счета действительных совпадений;
 τ — время затухания в детекторе.

На рис. 16.3 представлено распределение Росси-альфа. На рисунке показаны R , A и другие переменные, которые будут определены ниже. Здесь ясно виден экспоненциальный характер затухания событий деления.

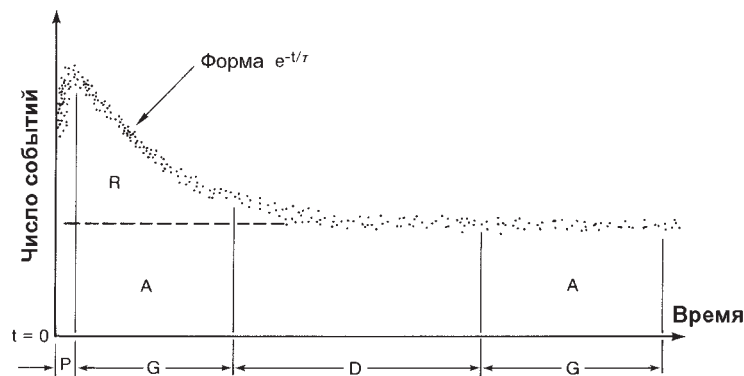


Рис. 16.3. Распределение Росси-альфа как функция времени после опорного стартового импульса. R — действительные события совпадений; A — случайные события совпадений; P — предварительная задержка; G — длительность мгновенных ворот и ворот с задержкой; D — длинная задержка; τ — время затухания

16.3 ОСНОВНЫЕ ОСОБЕННОСТИ СХЕМ СОВПАДЕНИЙ

16.3.1 Электронные ворота

Схемы совпадений часто содержат электронные составляющие, которые называются одновибраторами или "генераторами ворот". Всякий раз, когда на вход таких схем поступает импульс, они производят выходной импульс фиксированной длительности. Генераторы ворот, используемые для преобразования входных импульсов от детектора нейтронов в очень короткие выходные импульсы, называются триггерами. Генераторы ворот, которые применяются для преобразования входных импульсов в длительные выходные импульсы, называются "воротами". Такие генераторы ворот, а также усилители, детекторы и другие схемы определяют мертвое время электроники, перед тем как они могут опять работать. Это мертвое время имеет длительность не менее, по крайней мере, ширины ворот G . В

зависимости от схемотехнического решения это мертвое время может быть продлеваемым и непродлеваемым.

16.3.2 Продлеваемое и непродлеваемое мертвое время

На рис. 16.4 (а) представлена иллюстрация непродлеваемого (или непарализуемого, см. главу 4) мертвого времени в виде последовательности импульсов. Из четырех событий этой последовательности события 1, 2 и 4 приводят к образованию ворот, а событие 3 не приводит к образованию ворот и теряется. Используя уравнение (16.4), можно показать, что для чисто случайной входной скорости счета T выходная скорость счета T_m будет определяться следующей формулой:

$$T_m = \frac{T}{1+GT}. \quad (16.6)$$

Когда скорость импульсов на входе становится очень большой, скорость импульсов на выходе будет стремиться к предельному значению $1/G$, где G — ширина ворот.

Продлеваемое (или парализуемое) мертвое время проиллюстрировано на рис. 16.4 (б). Появление события 3 приводит к тому, что ворота, образованные событием 2, расширяются или продлеваются. Поэтому событие 4 не образует новых ворот. Только события 1 и 2 образуют ворота, а события 3 и 4 будут потеряны. Используя уравнение (16.4), можно показать, что для случайных событий справедливо следующее уравнение:

$$T_m = T e^{-GT}. \quad (16.7)$$

При возрастании скорости счета импульсов на входе, измеренная скорость счета увеличивается до максимального значения, которое достигается при скорости импульсов на входе равной $1/G$, и затем при дальнейшем увеличении входной скорости импульсов падает до нуля. Для небольших скоростей счета уравнения (16.6) и (16.7) дают идентичные поправки на мертвое время.

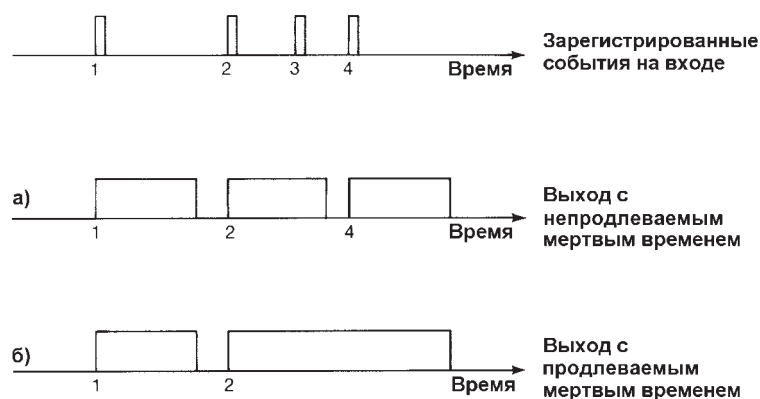


Рис. 16.4. Два генератора ворот с различным типом мертвого времени электроники: а) непродлеваемое мертвое время, б) продлеваемое мертвое время

16.3.3 Взаимокорреляционные и автокорреляционные схемы

Схемы совпадений могут быть реализованы большим числом различных способов комбинации одновибраторов или генераторов ворот с пересчетными устройствами. Каждая комбинация обладает различным мертвым временем электроники и описывается своим математическим аппаратом. Для регистрации нейтронов наиболее широко используются взаимокорреляционные и автокорреляционные схемы [5]. Схема простого взаимокорреляционного способа измерения показана на рис. 16.5 (а). Импульсы триггера от детектора 1 сравниваются с воротами, образованными импульсами от детектора 2. Этот тип схемы совпадения лучше всего подходит для очень быстрых импульсов детектора и коротких ворот, т.к. дает хорошую дискриминацию шумов детектора и образует очень мало случайных совпадений.

На рис. 16.5 (б) показана схема реализации идеального способа автокорреляционного измерения. Выходы обоих детекторов соединены вместе, образуя единую последовательность импульсов. Каждый импульс из этой последовательности образует короткий импульс триггера, а также длинный импульс ворот, что дает возможность сравнивать каждый импульс с последующим импульсом. Автокорреляционные схемы наиболее удобны для счетчиков тепловых нейтронов, поскольку можно объединить много отдельных счетчиков для получения высокой эффективности, а значительное время затухания в блоке детектирования вызывает много перекрытий импульсов от различных детекторов. Ширина ворот выбирается сравнимой со временем затухания, а для выделения случайных совпадений обычно используется отдельная параллельная цепь с триггером или воротами задержки (см. разделы 16.4 и 16.5).

Автокорреляционные схемы, описанные в разделах 16.4 и 16.5, являются наиболее важными схемами для регистрации нейтронных совпадений.

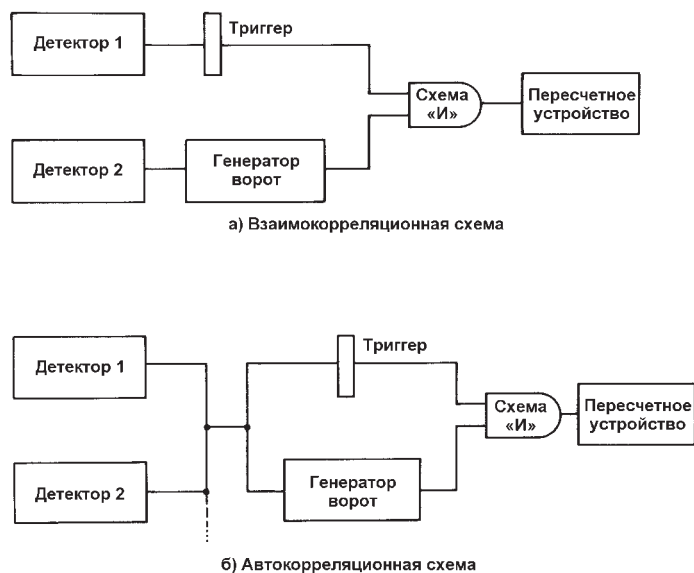


Рис. 16.5. Два типа схем совпадений: а) взаимокорреляционная схема; б) автокорреляционная схема

16.4 ТРИ ОСНОВНЫЕ СХЕМЫ РЕГИСТРАЦИИ СОВПАДЕНИЙ

16.4.1 Схема с переменным мертвым временем

Схема с переменным мертвым временем или VDC была разработана в Европе для анализа плутониевых отходов [6-8]. Эта схема является простой (рис. 16.6), но требует сложной процедуры анализа. Схема с переменным мертвым временем содержит короткие ворота, а также длинные ворота. Обычно ширина коротких ворот составляет 4 мкс и они служат для регистрации большинства событий деления и случайных событий. Длинные ворота обычно имеют ширину от 32 до 128 мкс и они не регистрируют большинство событий деления, но регистрируют большинство случайных событий. И те, и другие ворота являются воротами, которые не продлевают мертвое время, поэтому, используя уравнение (16.6), для приблизительного расчета чистой скорости совпадений R можно получить следующее выражение пропорциональности:

$$R \propto \frac{S_1}{1 - S_1 G_1} - \frac{S_2}{1 - S_2 G_2}, \quad (16.8)$$

где S_1 — скорость счета в пересчетном устройстве, соединенном с короткими воротами, ширина которых равна G_1 ;

S_2 — скорость счета в пересчетном устройстве, соединенном с длинными воротами, ширина которых равна G_2 .

Выражение (16.8) можно использовать только до скоростей счета порядка нескольких килогерц или менее, поскольку это выражение не разрешает интерференции между событиями деления и случайными событиями, более сложные выражения приведены в работах [9] и [10]. Когда вынужденные деления в образце приводят к образованию более длинных цепочек деления, возникают дополнительные трудности [11, 12]. По этой причине схема с переменным мертвым временем не может использоваться для анализа больших образцов со значимым эффектом умножения.



Рис. 16.6. Схема с переменным мертвым временем

16.4.2 Схема одновибратора с продлеваемым мертвым временем

Схема одновибратора с продлеваемым мертвым временем [10] показана на рис. 16.7. Первая половина этой схемы генерирует сигнал мгновенных совпаде-

ний между воротами шириной G и коротким триггером. Эти совпадения состоят из действительных R и случайных A совпадений. Для того, чтобы произвести поправку на случайные совпадения, необходимо добавить длительную задержку, а затем измерить совпадения между вторыми задержанными воротами ширины G и коротким исходным запускающим импульсом. Если значение длительной задержки намного превышает время затухания τ в детекторе, то вторая цепь совпадения будет измерять только случайные события A . Тогда отклик чистых совпадений R определяется как разность между показаниями двух пересчетных устройств. Рис. 16.3 поясняет этот процесс.



Рис. 16.7. Схема совпадений с продлеваемым мертвым временем на двух одновибраторах равной длительности

На рис. 16.3 также показано, что на действительные результаты измерений, которые подчиняются распределению Росси-альфа, накладывается несколько ограничений: а) наложение импульсов и мертвое время электроники будут искажать распределение вблизи $t = 0$, поэтому следует начинать анализ после некоторого времени P , называемого предварительной задержкой; б) из-за того, что распределение действительных событий распространяется за пределы временного интервала ворот G , некоторые действительные совпадения будут потеряны воротами без задержки; в) в принципе, некоторые действительные совпадения могут появиться и в воротах с задержкой, если величина задержки D недостаточна. Принимая во внимание эти ограничения, отклик действительных совпадений цепи одновибратора с продлеваемым мертвым временем рассчитывается с помощью следующей формулы:

$$R = \frac{(R - A)_{\text{пересч. устр.}} - (A)_{\text{пересч. устр.}} e^{-GT}}{e^{-P/\tau} (1 - e^{-G/\tau}) [1 - e^{-(D+G)/\tau}]} \quad (16.9)$$

Экспонента в числителе определяется выражением (16.7) и является поправкой на потерю счетных импульсов в течение ворот G с продлеваемой шириной. Такая большая поправка ограничивает полезность этой схемы для скоростей счета 20-30 кГц и ниже. Были также построены схемы одновибратора с непродлеваемым мертвым временем [13, 14], но их применение также ограничивалось низкими скоростями счета.

16.4.3 Логика уменьшенной дисперсии

Одна интересная схема анализа нейтронных совпадений берет свое начало из области анализа шумов реактора, который проводится с целью изучения флуктуации скорости счета систем, регистрирующих нейтроны. Используя эти флуктуации, можно вычислить моменты распределения скоростей счета нейтронов (дисперсионный метод Фейнмана [14]). Схема логики уменьшенной дисперсии RVL использует этот метод для анализа ядерных материалов [15 и 16].

Схема RVL накапливает полное число нейтронов C за короткий временной интервал, изменяющийся от 100 до 2000 мкс в зависимости от задачи. Это измерение повторяется в течение большого числа временных интервалов, пока не будет достигнуто приемлемое время анализа, которое может составлять от 100 до 1000 с. По результатам этих измерений схема вычисляет первый — C и второй — C^2 моменты распределения импульсов. Отношение дисперсии к среднему значению дается выражением $(\overline{C^2} - \overline{C}^2) / \overline{C}$. Для случайных отсчетов, для которых справедливо распределение Пуассона, это отношение равно единице.

Если имеются коррелированные во времени события, то значение параметра Y , которое определяется с помощью следующего уравнения:

$$Y = \frac{\overline{C^2} - \overline{C}^2}{\overline{C}} - 1, \quad (16.10)$$

будет отлично от нуля. Этот параметр зависит от эффекта размножения в образце и не зависит от скорости спонтанного деления в нем. Другая комбинация моментов пропорциональна массе образца:

$$Q = \overline{C^2} - \overline{C}^2 - \overline{C}. \quad (16.11)$$

Величина Q не зависит от случайного некоррелированного фона и пропорциональна только скорости счета действительных совпадений R .

Схема RVL генерирует параметры Q и Y для каждого анализируемого образца. Для небольшого образца без размножения массу $^{240}\text{Pu}_{\text{эфф}}$ можно найти непосредственно из Q . Для образцов со значимым эффектом саморазмножения значение массы $^{240}\text{Pu}_{\text{эфф}}$ получается с помощью графика нелинейной зависимости величины Y от $Q / ^{240}\text{Pu}_{\text{эфф}}$. График получают с помощью стандартного образца известной массы. Поправка к уравнению (16.11) на мертвое время электроники для высоких скоростей счета дана в [17].

В обычной практике схема RVL использовалась для анализа образцов с высоким размножением [18]. Для фиксированных заводских задач может быть добавлена система компьютерного анализа для получения высших моментов C и определения распределения временных интервалов между отдельными импульсами. В принципе, схема RVL использует то же самое распределение импульсов и обеспечивает ту же самую аналитическую информацию, что и схема сдвигового регистра, которая будет описана в следующем разделе. На практике схема RVL на данном уровне развития требует более сложных алгоритмов интерпретации данных и имеет ограничения по скорости счета.

16.5 СХЕМА АНАЛИЗА СОВПАДЕНИЙ НА ОСНОВЕ СДВИГОВОГО РЕГИСТРА

16.5.1 Принцип работы сдвигового регистра

В предыдущем разделе упоминалось, что некоторые общепринятые схемы совпадений требуют значительных поправок на мертвое время электроники. Такая поправка требуется из-за того, что анализ совпадений начинается с приходом одного импульса в момент времени $t=0$ и продолжается до момента времени $t = G$, где G — ширина временных ворот. Если за время G произойдет n событий, первое из них запустит ворота, а остальные $n-1$ событий будут зарегистрированы. Вторые ворота не могут открыться, пока длится временной интервал G , что эквивалентно появлению мертвого времени такой же величины.

Альтернативный подход состоит в запоминании последовательности импульсов, приходящих за время G . В действительности, каждый импульс генерирует свои собственные ворота; нет необходимости ждать, пока закончатся одни ворота, перед тем как начнутся другие. Такое запоминание событий исключает эффект мертвого времени, описанный выше, и позволяет работать при скоростях счета в несколько сотен килогерц и выше.

Возможность запоминать импульсы, поступающие за время G , обеспечивается интегрированной схемой, которая называется сдвиговым регистром. Он состоит из набора управляемых таймером триггеров, объединенных в разряды. Например, 64-разрядный сдвиговый регистр, управляемый генератором импульсов с частотой 2 МГц (0,5 мкс на разряд) образует ворота G шириной 32 мкс. Входные импульсы сдвигаются в этом регистре каждым тактовым импульсом генератора на один разряд, весь процесс занимает 32 мкс.

Эта концепция сдвигового регистра, свободного от мертвого времени, была предложена Бенелем [5]. Различные варианты схемы были разработаны Стефенсом, Свэнсеном и Истом [19], улучшены Свэнсеном [20,21] и совсем недавно Ламбертом [22]. К настоящему времени схема сдвигового регистра является наиболее широко применимой в американской и международной практике для задач регистрации совпадений. Примеры приведены в главе 17.

16.5.2 Ворота R+A

Работа схемы совпадений на основе сдвигового регистра лучше всего иллюстрируется с помощью распределения Росси-альфа (см. рис. 16.3), на котором показаны ворота G , открывающиеся без задержки, в границах которых собираются действительные и случайные совпадения $R+A$, а также задержанные ворота G , в границах которых собираются только случайные совпадения A . Между этими воротами существует длительная задержка D . Следует заметить, что регистрация совпадений не начинается, пока не пройдет короткий интервал времени P (предварительная задержка). В течение этого времени, обычно изменяющегося от 3 до 6 мкс, распределение Росси-альфа искажается за счет наложений импульсов и мертвого времени электроники, и поэтому скорость счета действительных совпадений не может быть измерена. После такой предварительной задержки сдвиговый регистр формирует $R+A$ ворота без задержки, обычная длина которых составляет от 32 до 64 мкс.

Упрощенная блок-схема сдвигового регистра для измерения $R+A$ событий приведена на рис. 16.8. Вход устройства (не показан) является схемой логического "ИЛИ", которая суммирует сигналы со всех выходов усилителей-дискриминаторов, образуя автокорреляционную схему. Каждый входной импульс после предварительной задержки P проходит через сдвиговой регистр. Каждый импульс, входящий в сдвиговой регистр, поступает на прямой вход реверсивного счетчика, увеличивая его содержимое на единицу, в то время как каждый импульс, выходящий из сдвигового регистра, уменьшает его содержимое на единицу. Таким образом, в любой момент времени в памяти реверсивного счетчика содержится количество импульсов, находящихся внутри сдвигового регистра. Каждый входной импульс, перед тем как поступить на вход предварительной задержки и сдвигового регистра, заставляет реверсивный счетчик сбрасывать содержащуюся к этому моменту в нем информацию в пересчетное устройство $R+A$, добавляя ее к его предыдущему содержимому (стробирующее действие).

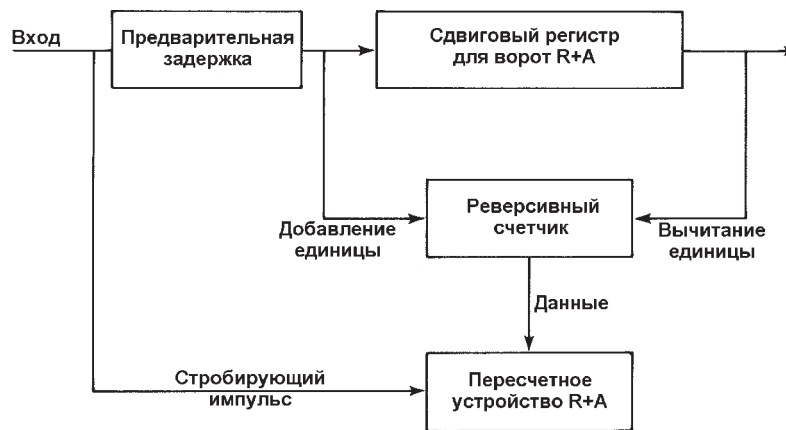


Рис. 16.8. Упрощенный вид схемы совпадений со сдвиговым регистром, которая регистрирует (действительные + случайные) события совпадений ($R+A$)

Приведенная выше последовательность действий гарантирует, что события, достаточно далеко разнесенные по времени, никогда не зарегистрируются в пересчетном устройстве $R+A$. Однако если два импульса приходят с разделением по времени более чем P , но менее чем $P+G$, тогда один из них будет находиться в сдвиговом регистре (содержимое реверсивного счетчика будет равно единице). Другой импульс в это время будет являться стробирующим сигналом, по которому содержимое реверсивного счетчика переносится в пересчетное устройство $R+A$. Таким образом, будет зарегистрировано совпадение, как и требуется, в соответствии с рис. 16.3. Следует отметить, что если три и более импульсов присутствуют в соответствующем временном интервале, то алгоритм регистрации будет записывать все возможные пары совпадений между событиями.

Например:

Для следующего числа импульсов, расположенных близко друг к другу число совпадений, которое будет зарегистрировано, равно	
0	0	
1	0	
2	1	(16.12)
3	3	
4	6	
n	$n(n - 1)/2$	

Число возможных перестановок двойных совпадений может превышать число импульсов. На практике этот алгоритм регистрации не приносит ни вреда, ни пользы, просто является следствием одинаковой обработки всех входных импульсов.

Рассмотренные выше события совпадений могут быть результатом двух или более нейтронов от одного спонтанного деления (действительные события деления) или результатом случайного совпадения во времени фоновых нейтронов или нейтронов от разных событий деления (случайные события). Поэтому число отсчетов, накапливаемых устройством, описанным выше, называется числом отсчетов $R+A$.

16.5.3 Ворота А

Действительные события деления R можно определять косвенным образом, добавляя вторую законченную схему сдвигового регистра для измерения случайных событий A . Эта схема идентична схеме $R+A$, за исключением того, что вводится продолжительная задержка D между сдвиговым регистром, определяющим ворота A , и входным импульсом, который стробирует передачу содержимого реверсивного счетчика в пересчетное устройство A . Задержка D гораздо длиннее времени затухания в детекторе, поэтому в момент времени $t=0$ еще нет нейтронов от событий деления, как это показано на рис. 16.3. Обычно величина D выбирается равной 1000 мкс, что значительно больше типичных значений времени затухания (30-100 мкс). При такой длительной величине задержки, равной D , пересчетное устройство A будет записывать только случайные совпадения, которые будут включать фоновые события, некоррелированные наложения событий деления и фона, а также некоррелированные наложения различных событий деления. Число случайных совпадений, зарегистрированных в пересчетном устройстве A , будет с точностью до случайных флуктуаций регистрации равно числу случайных совпадений, зарегистрированных в пересчетном устройстве $R+A$, если длина обоих временных ворот сдвиговых регистров A и $A+R$ строго одинакова. Тогда разность чисел отсчетов, полученных в двух пересчетных устройствах, равна чистому числу отсчетов действительных совпадений R , которое пропорционально скорости деления в образце.

На практике, схема, которая измеряет случайные события, может быть сформирована посредством введения второй задержанной схемы сдвигового регистра или посредством введения второго задержанного строба. Последний подход используется в последних разработках схемы [20-22] ввиду простоты и легкости генерации ворот A и $R+A$ одной и той же ширины. На рис. 16.9 показана блок-схе-

ма этой последней версии схемы совпадения на основе сдвигового регистра, которая включает пересчетное устройство полной скорости счета T , а также пересчетные устройства A и $R+A$.

Пересчетное устройство A регистрирует случайные совпадения между зарегистрированными событиями полного счета нейтронов; с точностью до случайных флуктуаций справедливо следующее соотношение:

$$A = GT^2, \quad (16.13)$$

где A и T — скорости счета;

G — ширина ворот совпадений [24].

Эта нелинейная зависимость показывает, что A будет превышать T , когда полная скорость счета будет больше чем $1/G$. С помощью уравнения (16.13) можно вычислить A , не проводя измерений. Однако лучше измерять A с помощью схемы, описанной выше, т.к. при этом происходит ее непрерывная и автоматическая коррекция при любых изменениях полной скорости счета в течение анализа. Уравнение (16.13) может быть в таком случае использовано позднее для диагностической проверки отклонений скорости счета или характеристик прибора.

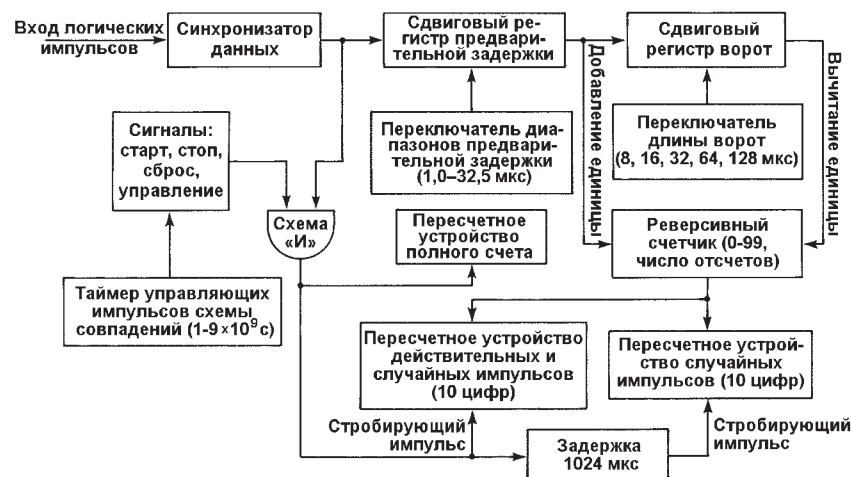


Рис. 16.9. Блок-схема полной схемы совпадений со сдвиговым регистром, включающая: пересчетное устройство полного счета, а также пересчетное устройство $R+A$ и пересчетное устройство A [23]

16.5.4 Чистый отклик совпадений R

Из рис. 16.3 и приведенных выше рассуждений вытекает, что отклик действительных совпадений сдвигового регистра связан с измеренными значениями на выходе пересчетных устройств следующим уравнением:

$$R = \frac{(R + A)_{\text{пересч. устр.}} - (A)_{\text{пересч. устр.}}}{e^{-P/\tau} (1 - e^{-G/\tau}) [1 - e^{-(D+G)/\tau}]}. \quad (16.14)$$

Уравнение (16.14) идентично уравнению (16.9) за исключением того, что для сдвигового регистра не требуется большая экспоненциальная поправка на мертвое время. Меньшие поправки на мертвое время усилителя приведены ниже в разделе 16.6. Составляющая $[1 - e^{-(D+G)/\tau}]$ должна быть близка к единице, если задержка D много больше, чем время затухания τ в детекторе. Следовательно, этот множитель можно не учитывать при дальнейшем рассмотрении.

В уравнении (16.14) величина R представляет полное число отсчетов совпадений, которое могло быть получено, если бы не требовалось знание значений предварительной задержки, ширины ворот или задержек. На практике для величин P, G и D стараются поддерживать фиксированные значения, которые могут быть определены в процессе градуировки с использованием известных стандартных образцов. Тогда величину $R = (R+A)_{\text{пересч. устр.}} - (A)_{\text{пересч. устр.}}$ можно рассматривать как наблюдаемый отклик нейтронных совпадений. Важное уравнение, которое связывает величину R с физическими характеристиками образца, детектора и схемы совпадений, можно получить из уравнений (16.2), (16.12) и (16.14) и оно имеет следующий вид [5, 25]:

$$R = m_{240}(473 \text{ делений} / c \cdot \tau) \epsilon^2 e^{-P/\tau} (1 - e^{-G/\tau}) \sum_v P(v) \frac{v(v-1)}{2!}, \quad (16.15)$$

где: R — истинная скорость счета совпадений;
 m_{240} — эффективная масса $^{240}\text{Pu}_{\text{эф}}$ образца;
 ϵ — полная эффективность детектора;
 v — множественность нейтронов спонтанного деления;
 $P(v)$ — распределение вероятности множественности;
 P — предварительная задержка;
 G — ширина ворот совпадений;
 τ — время затухания отклика в детекторе.

Уравнение (16.15) показывает опять, что отклик схемы сдвигового регистра для n событий, близких по времени друг к другу, пропорционален $v(v-1)/2$, в то время как отклик традиционной схемы был бы пропорционален $(v-1)$. Для реальных значений величин ϵ и v разности не велики и автоматически рассчитываются при проведении градуировки. В разделе 16.5.2 было показано, что выражение $v(v-1)/2$ представляет собой сумму всевозможных парных совпадений событий для последовательности v событий. Таким образом, сдвиговый регистр собирает все возможные действительные совпадения. Отклик схемы совпадений остается все еще линейным относительно массы образца. Однако эффекты саморазмножения в образце, описанные в разделе 16.8, действительно воздействуют на сдвиговый регистр значительно сильнее, чем на традиционные схемы, поэтому схемы сдвигового регистра требуют больше поправочных коэффициентов.

Уравнение (16.15) предоставляет возможность определения времени затухания отклика τ в детекторе. Если один и тот же образец анализируется одним и тем же способом, но при двух разных значениях ширины ворот G_1 и G_2 , (где $G_2=2G_1$) и двух соответствующих значениях отклика совпадения R_1 и R_2 , то для τ справедливо следующее соотношение:

$$\tau = -G_1 / \ln(R_1 / R_2 - 1). \quad (16.16)$$

16.6 ПОПРАВКИ НА МЕРТВОЕ ВРЕМЯ СДВИГОВОГО РЕГИСТРА

В предыдущем разделе было показано, что ширина ворот совпадений G не приводит к мертвому времени в схеме сдвигового регистра, что позволяет работать при скоростях счета выше 100 кГц. Однако при таких высоких скоростях счета становится заметным влияние ряда меньших значений мертвого времени от аналоговых и цифровых элементов схемы. Они включают:

- время сбора заряда детектора;
- время формирования импульса усилителя;
- время восстановления базовой линии усилителя;
- потери в воротах схемы "ИЛИ" дискриминатора;
- потери из-за синхронизации входных импульсов сдвигового регистра.

Влияние этих эффектов может быть изучено с помощью калифорниевского источника коррелированных во времени нейтронов и источника $AmLi$ некоррелированных нейтронов, а также с помощью любого генератора случайных импульсов [26]. Хотя эти эффекты могут быть изучены порознь или вместе, бывает трудно точно разобраться в их суммарном влиянии на искажение последовательности импульсов, поскольку каждое мертвое время искажает последовательность импульсов и изменяет действие следующего мертвого времени. Этот раздел суммирует то, что известно к настоящему времени о мертвом времени из-за перечисленных выше источников. Приводятся эмпирические поправочные коэффициенты и описываются некоторые электронные решения для уменьшения мертвого времени.

16.6.1 Мертвое время детектора и усилителя

Большинство измерительных систем на основе сдвигового регистра, используемых в настоящее время, содержат аналоговые электронные компоненты, которые включают: а) пропорциональные газонаполненные счетчики; б) зарядочувствительные предусилители; в) усилители и г) дискриминаторы. Как описано в разделе 13.2, зарядовый сигнал может быть получен из газонаполненного счетчика за среднее время от 1 до 2 мкс после взаимодействия нейтрона. Этот временной разброс ограничен изменениями положения в пространстве точки взаимодействия и не является, вообще говоря, мертвым временем. Однако способность детектора разрешать два отдельных импульса будет сравнима с этим временным разбросом. Выходной импульс предусилителя имеет длительность фронта около 0,1 мкс, а постоянная времени усилителя обычно составляет 0,15 или 0,5 мкс. Если все электронные компоненты, перечисленные выше, объединяются так, чтобы один предусилитель и один усилитель с постоянной времени, равной 0,5 мкс, служили семи газонаполненным счетчикам, наблюдается мертвое время около 5 мкс [27]. На практике это мертвое время уменьшается при использовании нескольких цепей с предусилителем-усилителем, как описано в разделе 16.6.4.

Выход усилителя связан со входом дискриминатора, который состоит из детектора уровня и схемы одновибратора. Выходной сигнал схемы одновибратора имеет длительность от 50 до 150 нс.

16.6.2 Смещение из-за наложения импульсов

В добавление к истинному мертвому времени электронные компоненты могут создавать смещение на выходе сдвигового регистра. Смещение определяется, как разность между величинами скоростей счета $R+A$ и A , когда используется такой источник случайного потока нейтронов, как $AmLi$. Для такого источника разность $(R+A) - A$ должна быть равна нулю; если это не так, смещение, выраженное в процентах, составляет $100 R/A$. Возможные источники смещения включают: шумы электроники; нескомпенсированный "полюс-ноль" усилителя; входную емкость сдвигового регистра; мертвое время, превышающее предварительную задержку P или смещение базовой линии усилителя после прохождения импульса, которое является наиболее важным источником смещения, если компоненты электроники правильно отрегулированы для минимизации других источников. Любые близко расположенные импульсы, которые попадут на смещенную базовую линию до того, как она будет полностью восстановлена до нуля, имеют различную вероятность переключения дискриминатора. Смещение, возникающее из-за наложения импульсов, пропорционально квадрату скорости счета и может стать заметным при высоких скоростях счета. Если базовая линия восстановлена не полностью за время меньшее, чем длительность предварительной задержки, эффект будет расширен до ворот $R+A$, и в результате появится смещение.

На рис. 16.10 [28] показана зависимость результатов измерения смещения от длительности предварительной задержки. При измерениях использовался счет-

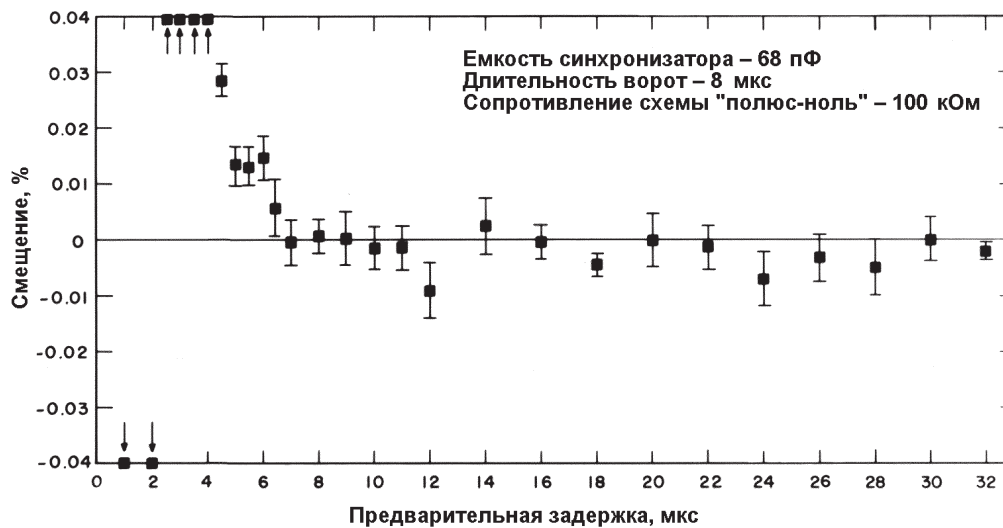


Рис. 16.10. Смещение отношения совпадений R/A для сдвигового регистра как функция от величины предварительной задержки P для электроники с постоянной времени, равной $0,5$ мкс, измеренное для высокоинтенсивного $AmLi$ -источника случайных нейтронов. В этих измерениях отношение R/A было минимизировано за счет использования оптимального значения сопротивления схемы «полюс-ноль» для усилителя, равного 100 кОм, и входной емкости синхронизатора сдвигового регистра, равной 68 пФ. Чтобы добиться максимальной чувствительности к любому остаточному смещению используются ворота совпадений G с длительностью, равной 8 мкс [28]

чик совпадений с шестью каналами усиления. Наблюдалось уменьшение смещения до приемлемого уровня, т.е. до 0,01 % или ниже при длительности предварительной задержки 4,5 мкс или выше. Эти результаты являются обычными для хорошо отлаженной электроники. Для некоторых высокоэффективных счетчиков, которые обладают длительным временем затухания и работают при скоростях счета выше 100 кГц, длительность предварительной задержки, равная 6-8 мкс, может гарантировать хорошие результаты, но обычно 4,5 мкс является достаточной задержкой.

При высоких скоростях счета величина R обычно находится в пределах 1 % от A ; смещение из-за наложений импульсов, составляющее 0,01 % для отношения R/A , приводит к относительному смещению для R , равному 1 %, что только на грани приемлемого.

16.6.3 Мертвое время цифровой электроники

Из-за мертвого времени в цепи усилитель-дискриминатор естественно разделить выходы всех детекторов счетчика совпадений на несколько усилителей, обычно от 4 до 6. Каждый канал с усилителем может обслуживать от трех до семи детекторов. Выходные сигналы дискриминатора каждого канала затем суммируются с помощью стробирующей схемы "ИЛИ" до того, как они поступят в сдвиговый регистр (автокорреляционная модель). Вклад в мертвое время самой стробирующей схемы "ИЛИ" может быть вычислен при следующих предположениях: а) в самом канале нет потерь из-за более длительного мертвого времени предшествующего усилителя и б) потери между каналами обусловлены перекрытием импульсов.

Степень перекрытия импульсов схемы "ИЛИ" =

$$= \frac{n(n-1)}{2!} 2(\text{ширина выходного сигнала дискриминатора})(T/n)^2, \quad (16.17)$$

где n — число каналов;

T — полная скорость счета.

Идеальное мертвое время для стробирующей схемы "ИЛИ", которая принимает импульсы с длительностью, равной 50 нс, определяется следующим уравнением:

$$\text{Мертвое время схемы "ИЛИ"} = \frac{n-1}{n} 50, \text{ нс}. \quad (16.18)$$

Это мертвое время для полной скорости счета. Мертвое время для скорости счета совпадений не вычислялось, но, по-видимому, будет больше.

На выходе стробирующей схемы "ИЛИ" образуется поток цифровых импульсов, который поступает на вход сдвигового регистра. К этому моменту времени импульсы с длительностью 50 нс должны быть синхронизованы с 500 наносекундными тактами сдвигового регистра. Ограничение одного импульса на такт означает, что некоторые близко расположенные импульсы будут потеряны, если не использовать выравнивающий буфер (раздел 16.6.5). Эти потери были измерены

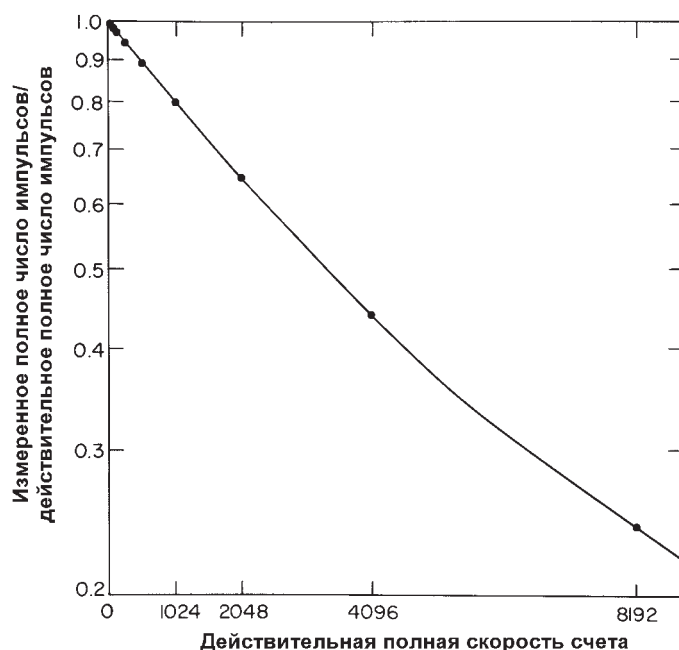


Рис. 16.11. Мертвое время синхронизатора сдвигового регистра, измеренное с помощью цифрового генератора случайных импульсов, присоединенного непосредственно ко входу синхронизатора. Такт сдвигового регистра составлял 500 нс, а разрешение между парами импульсов генератора случайных событий составляло 60 нс

с помощью цифрового генератора случайных импульсов, как показано на рис. 16.11. Форма этой кривой описывается следующей функцией:

$$\text{Измеренное полное число импульсов} = (1 - e^{-pT})/p, \quad (16.19)$$

где p — период таймера сдвигового регистра (500 нс в данном случае);

T — полная входная скорость счета [29].

Для низкой скорости счета уравнение (16.19) дает непродлеваемое мертвое время, равное $p/2$; для более высоких скоростей эта величина приближается к p ; мертвое время совпадений является величиной порядка $2p$, как описано в работе [29]. В общем случае мертвое время значительно меньше мертвого времени усилителя, но оно становится заметным при высоких скоростях счета. Например, при частоте импульсов, равной 256 кГц, потери в полной скорости счета составят 6 %, а соответствующие потери для совпадений будут больше.

16.6.4 Эмпирические формулы поправки на мертвое время

Суммарный эффект мертвого времени от аналоговой и цифровой электроники, описанный выше, нельзя рассчитать, но можно определить эмпирически с помощью калифорниевых источников и источников AmLi. Мертвое время совпадений δ_c может быть определено, помещая калифорниевый источник в фиксированное положение внутри колодезного счетчика и измеряя отклик совпадений, вводя все более и более активные источники AmLi. При проведении таких измерений следует обратить внимание на: 1) хорошую центровку источников с тем, чтобы каждый канал блока детектирования регистрировал одинаковую скорость счета;

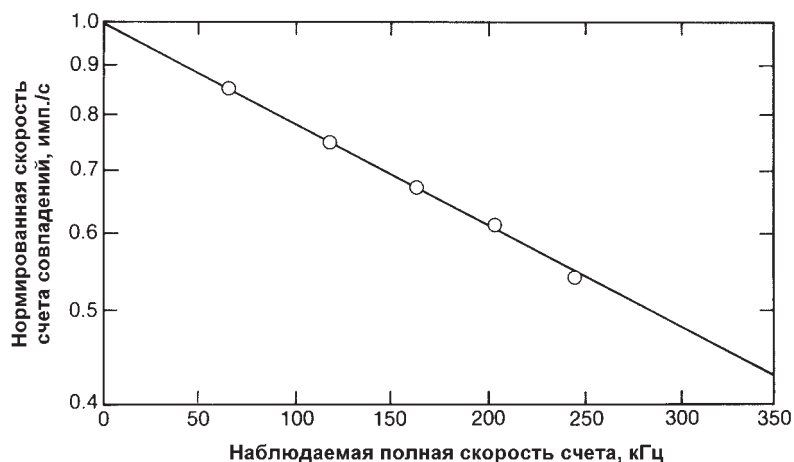


Рис. 16.12. Полудогарифмический график нормированного отклика совпадений от калифорниевых источников как функция роста полной скорости счета от дополнительных AmLi-источников. Точки на графике представляют измеренные значения; линия получена путем подгонки методом наименьших квадратов к экспоненте с коэффициентом мертвого времени $\delta_c = 2.4$ мкс [24]

2) держать источники отдельно друг от друга, чтобы минимизировать эффекты рассеяния. Результат такого измерения показан на рис. 16.12. С точностью до неопределенностей измерения общее мертвое время совпадений для продлеваемого мертвого времени будет с хорошей точностью представлено уравнением (16.7). Мертвое время для полного счета δ_t может быть измерено с помощью методики дополнительного источника, при которой в счетчике измеряются два калифорниевых источника или два источника AmLi, сначала отдельно, а затем вместе. Уравнение для продлеваемого мертвого времени также хорошо работает для поправки общей скорости счета. Смещение можно измерить, помещая в счетчик только источники случайных совпадений AmLi.

Если выполняется предположение, что электронные компоненты могут быть так отрегулированы, что смещением можно пренебречь, как описывалось в разделе 16.6.2, то для поправки на мертвое время будут справедливы следующие общие эмпирические уравнения:

$$T(\text{скорректированная}) = T_m e^{\delta_t T_m}, \quad (16.20)$$

$$R(\text{скорректированная}) = R_m e^{\delta_c T_m}, \quad (16.21)$$

где T_m и R_m — измеренные значения полной скорости счета и скорости счета совпадений $(R+A)_{\text{пересч. устр.}} - (A)_{\text{пересч. устр.}}$.

Отметим, что в уравнениях (16.20) и (16.21) аргументом экспоненты является T_m , а не скорректированная скорость счета T , которая появляется в уравнении (16.7). Использование T_m является удобным приближением для скоростей счета до 100 кГц, но для более высоких скоростей счета коэффициенты δ_t и δ_c становятся скорее функциями скорости счета, чем константами. В табл. 16.1 приведены значения δ_t и δ_c , которые подходят для усилительных цепей и сдвигового ре-

гистра, наиболее принятых в настоящее время, с частотой 2 МГц (данные взяты из работ [27, 30, 31]). Например, для 6 каналов с постоянной времени усилителей, равной 0,15 мкс, значение $d_c = 0,62$ мкс, а общее мертвое время совпадений составит около 6 % при скорости счета, равной 100 кГц.

Из табл. 16.1 видно, что коэффициент мертвого времени слабо зависит от типа газовой смеси детектора и сильно зависит от числа усилительных каналов. Число газоразрядных счетчиков на один усилительный канал не дает заметного вклада в коэффициенты, хотя эта ситуация может измениться, если газоразрядные счетчики будут работать при скоростях счета выше 20 кГц на каждый счетчик. Следует также отметить, что коэффициенты мертвого времени совпадений, приведенные в табл. 16.1, были измерены с помощью калифорниевского источника ($v = 3,757$), в то время как наиболее важным для анализа является изотоп плутония ^{240}Pu ($v = 2,16$). Эффект от этого различия до сих пор не изучен.

Таблица 16.1 – Сводные данные эмпирически полученных значений коэффициентов мертвого времени счетчика совпадений на основе сдвигового регистра [27,30,31]

Газовые примеси детектора на He^3	Число детекторов на канал	Число усилительных каналов	Постоянная времени усилителя, мкс	Мертвое время, мкс		
				общий счет нейтронов, δ_c	счет совпадений, δ_s , 0-100 кГц	счет совпадений, δ_s , 0-500 кГц
Ar+CH ₄	7	6	0,5*	0,6	2,4	$2,3+1,6 \times 10^{-6} T_m$
Ar+CH ₄	7	4	0,5	0,87	3,0	$2,8+2,7 \times 10^{-6} T_m$
Ar+CH ₄	7	2	0,5	2,9	4,7	
Ar+CH ₄	7	1	0,5	4,9	12,6	
5% CO ₂	7	6	0,5	0,9	3,1	
Ar+CH ₄	3	6	0,15**	0,16	0,62	$0,62+0,20 \times 10^{-6} T_m$

*Схема усилителя с постоянной времени 0,5 мкс была разработана Лос-Аламосской лабораторией [22,23].

**Интегрированная схема АМРТЕК А-111 с постоянной времени 0,15 мкс и выравнивающим буфером на входе сдвигового регистра (см. раздел 16.6.5).

16.6.5 Электроника АМРТЕК и выравнивающий буфер

Последние улучшения в аналоговой и цифровой электронике включают в себя быстродействующие усилители, дискриминаторы с укороченным выходным сигналом и выравнивающие буферы на входе сдвигового регистра [31]. Быстродействующий усилитель, который имеет эффективную постоянную времени около 0,15 мкс, состоит из зарядочувствительного предусилителя (разновидность Модели А-111), дискриминатора и формирователя импульсов производства корпорации АМРТЕК (Бедфорд, штат Массачусетс). Этот модуль обеспечивает до-

статочные усиление и отношение сигнал/шум, если счетчик на He^3 работает при напряжении +1700 В. Модель А-111 вместе с другой электроникой была объединена на единой печатной плате, вставленной в небольшой экранирующий кожух. Каждый такой кожух содержит усилитель, нечувствительный к внешнему шуму, выходной монитор на светодиодах, дискриминатор на выходе с длительностью импульса до 50 нс и разъемы для объединения вместе всех каналов с помощью схемы "ИЛИ". Шесть каналов модулей А-111 могут быть использованы с уменьшенной величиной предварительной задержки до 3 мкс со смещением менее 0,01 %.

Выравнивающий буфер сохраняет импульсы до поступления на вход сдвигового регистра, что позволяет исключить потери при синхронизации, описанные в разделе 16.6.3. Входные импульсы, разделенные менее чем на 0,5 мкс (длительность такта сдвигового регистра) сохраняются в 16-ти разрядном буфере до того момента времени, когда сдвиговый регистр будет готов их принимать. Эта цепь уменьшает приведенное к входу сдвигового регистра мертвое время совпадений до 1 мкс и позволяет работать при скоростях счета до 2 МГц фактически без потерь регистрации синхронизатора. Однако, когда выравнивающий буфер растягивает последовательность импульсов во времени, это может создать последовательности импульсов длиннее, чем длительность предварительной задержки, и привести к смещению результатов. Поскольку усилитель А-111 требует установить величину предварительной задержки, составляющую только 3 мкс, максимально рекомендованная скорость счета, при которой смещение не превышает 0,01%, составляет 500 кГц.

Применение электроники АМРТЕК и выравнивающего буфера позволяет уменьшить мертвое время совпадений в четыре раза до 0,6 мкс, как это видно из табл. 16.1. Такая комбинация устройств позволяет проводить пассивный анализ практически любых плутониевых образцов, с единственным ограничением обеспечения ядерной безопасности образца в измерительном колодце.

16.7 НЕОПРЕДЕЛЕННОСТИ ИЗ-ЗА СТАТИСТИЧЕСКОГО ХАРАКТЕРА ПРОЦЕССА РЕГИСТРАЦИИ

В принципе, эффект, обусловленный статистическим характером отклика совпадений, является очень сложным, поскольку последовательность входных импульсов содержит как случайные, так и коррелированные события, и поскольку коррелированные события могут перекрываться различным образом. Некоторые из этих усложняющих факторов кратко описаны в данном разделе. Для счетчиков совпадений, используемых на практике, эти факторы не велики, и обычно существует возможность вычислить неопределенности измерений совпадений с помощью простого уравнения (16.22), приведенного ниже в разделе 16.7.1.

Главным фактором, который усложняет неопределенности измерений, является наличие неслучайного распределения нейтронов спонтанного деления. Случайные нейтроны, обусловленные фоном или событиями (α, n)-реакций, подчиняются распределению Пуассона: для числа отсчетов n дисперсия равна n , а относительная погрешность составляет: $\sigma_n / n = \sqrt{\text{var}(n)} / n = 1 / \sqrt{n}$. Однако, если источник спонтанного деления испускает суммарное число нейтронов T в S актах деления, где

$T = \bar{v}S$ (\bar{v} — средняя множественность нейтронов), относительная погрешность составит $1/\sqrt{S}$, а не $1/\sqrt{T}$, т.к. число актов спонтанного деления подчиняется закону Пуассона, а полное число испущенных нейтронов ему не подчиняется. Это объясняется тем, что испускание более одного нейтрона на деление не предоставляет какой-либо дополнительной информации, которая позволила бы уменьшить неопределенность измерений.

Бенель показал [5], что регистрация n спонтанных нейтронов при эффективности ϵ имеет дисперсию

$$\frac{\text{var}(n)}{n} = 1 + \epsilon \frac{\bar{v}^2 - \bar{v}}{\bar{v}}. \quad (16.22)$$

Если \bar{v} стремится к 1 или ϵ стремится к 0, то дисперсия стремится к дисперсии распределения Пуассона $\text{var}(n)=n$, но всегда остается больше этого значения. Из уравнения (16.22) видно, что неопределенность измерений будет зависеть от множественности источника деления, от доли случайных событий ($v=1$), а также от эффективности детектора. Другие усложняющие факторы включают время затухания отклика детектора и полную скорость счета, которые определяют степень перекрытия событий. Регистрация совпадений будет вводить дополнительные усложнения.

16.7.1 Простое уравнение для оценки погрешности сдвигового регистра

Замечено, что на практике отклонения значений n и ϵ от распределения Пуассона не очень большие, что следует из соотношения (16.22) и из последовательности импульсов, приведенной на рис. 16.1 (б). Если регистры $R+A$ и A , как предполагается, не коррелированы и подчиняются распределению Пуассона, то относительная статистическая погрешность может оцениваться с помощью следующего уравнения:

$$\frac{\sigma R}{R} = \frac{\sqrt{(R+A)+A}}{R} = \frac{\sqrt{R+2A}}{R}. \quad (16.23)$$

Это приближение проверялось для большого числа реальных измерений и оказалось справедливым с погрешностью до 15 % для PuO_2 и до 25 % для ^{252}Cf . Поскольку часто на точность анализа влияют так же другие неопределенности, такой уровень оценки статистической неопределенности можно считать достаточным. Более точные уравнения приведены в [5].

Используя уравнение (16.13), уравнение неопределенности (16.23) можно переписать в следующем виде:

$$\frac{\sigma R}{R} = \frac{\sqrt{R+2GT^2}}{R\sqrt{t}}, \quad (16.24)$$

где R и T — скорректированные на мертвое время скорости счета (уравнения (16.20) и (16.21));

t — время счета.

Уравнение (16.24) справедливо для схемы анализа совпадений с переменным мертвым временем и для схемы одновибратора с продлеваемым мертвым временем, а также для сдвигового регистра, что подтверждается экспериментально [10].

Поскольку величина R пропорциональна $(1 - e^{-G/\tau})$, то оптимальная оценка ширины ворот G , которая минимизирует относительную погрешность для заданного времени затухания τ , может быть получена с помощью дифференцирования уравнения (16.24). В результате имеем следующее уравнение:

$$G = \tau(e^{G/\tau} - 1) / 2 \approx 1,257\tau. \quad (16.25)$$

16.7.2 Неопределенности для пассивного и активного счета совпадений

При пассивном счете нейтронных совпадений измеренная полная скорость счета пропорциональна $\epsilon m_{240}t$, а измеренная скорость счета совпадений пропорциональна $\epsilon^2 m_{240}t$, где m_{240} — эффективная масса ^{240}Pu , а t — время счета. Статистическая неопределенность измерений (уравнение (16.23) или (16.24)) определяется следующим выражением пропорциональности:

$$\frac{\sigma R}{R} \propto \frac{\sqrt{k_1 m_{240} + 2 k_2 G m_{240}^2}}{\epsilon m_{240} \sqrt{t}}, \quad (16.26)$$

где k_1 и k_2 — постоянные пропорциональности. Для очень малых образцов относительная погрешность пропорциональна $1/\sqrt{m_{240}}$; для больших образцов относительная погрешность не зависит от массы образца. В любом случае относительная погрешность пропорциональна $1/\epsilon$, это означает, что эффективность пассивного колодезного счетчика должна быть как можно выше.

Активный анализ урановых образцов может выполняться с помощью активного колодезного счетчика нейтронных совпадений АWCC, который использует источники AmLi для возбуждения делений ^{235}U (см. раздел 17.3.1). Статистическая неопределенность результатов измерений для АWCC также определяется уравнениями (16.23) и (16.24). Скорость счета совпадений пропорциональна $\epsilon^2 m_{235}tS$, где m_{235} — масса ^{235}U ; t — время счета; S — интенсивность источника AmLi. Хотя полная скорость счета увеличивается за счет вынужденных делений, этот эффект на практике является небольшим и для вычислений погрешности имеет смысл предположить, что полная скорость счета прямо пропорциональна ϵSt . Тогда справедливо следующее выражение пропорциональности:

$$\frac{\sigma R}{R} \propto \frac{\sqrt{k_1 m_{235}S + 2 G k_2 S^2}}{\epsilon m_{235} S \sqrt{t}}, \quad (16.27)$$

где k_1 и k_2 — постоянные пропорциональности. Для больших масс урана и слабых источников относительная погрешность пропорциональна $1/\sqrt{m_{235}S}$. Для мощных источников относительная погрешность пропорциональна $1/\epsilon m_{235}$.

Последнее соотношение имеет несколько интересных последствий. Во-первых, для достаточно мощных источников, для которых можно гарантировать, что R много меньше A , относительная погрешность не зависит от интенсивности этих источников. Это свойство имеет то преимущество, что источники должны быть только достаточно мощными, чтобы удовлетворять этому критерию, который на

практике соответствовал 2×10^4 нейтрон/с (для двух источников, при пренебрежимо малом фоне и отсутствии пассивного сигнала от образца [32]). Однако это свойство имеет недостаток, который заключается в том, что точность анализа не может быть улучшена за счет введения еще более мощных источников. Когда G , ϵ , k_1 и k_2 определяются только конструкцией колодезного счетчика, точность анализа можно изменить, только изменяя время счета. Во-вторых, абсолютная погрешность анализа почти не зависит от массы образца и определяется, главным образом, скоростью счета случайных совпадений.

Для АWСС, описанного в [32], абсолютная погрешность анализа для "быстрой" конфигурации при времени счета 1000 с соответствует $18 \text{ г } ^{235}\text{U}$.

16.8 ЭФФЕКТЫ САМОРАЗМНОЖЕНИЯ В ОБРАЗЦЕ

Среди эффектов, которые могут исказить счет пассивных нейтронных совпадений, обычно доминирующим является саморазмножение отклика совпадений вынужденных делений в образце. Этот эффект существует во всех плутониевых и в меньшей степени в урановых образцах. Пассивные счетчики совпадений реагируют на вынужденные деления так же, как на спонтанные деления. Таким образом, отклик для данного количества спонтанно делящегося материала умножается и показывает большее количество ядерного материала, чем имеется на самом деле. В этом разделе описывается важность этого эффекта для анализа плутония и предлагается коэффициент поправки на саморазмножение, который для некоторых ситуаций анализа оказывается полезным.

16.8.1 Источник эффекта саморазмножения

Существуют два обычных внутренних источника нейтронов, которые вызывают вынужденные деления. Одним источником являются сами спонтанно делящиеся изотопы. Например, нейтроны, испускаемые ^{240}Pu , могут поглощаться ядром ^{239}Pu и вызывать вынужденные деления этих ядер. Средняя множественность спонтанного деления $\nu_s = 2,16$, а средняя множественность нейтронов при вынужденном делении под действием тепловых нейтронов $\nu_1 = 2,88$ (см. табл. 11.1). Схема совпадений не может установить различие между этими двумя множественностями, и поэтому будут зарегистрированы оба типа делений.

Другим источником нейтронов являются (α, n) -реакции на легких элементах матрицы. Например, в двуокиси плутония α -частицы от ^{238}Pu могут взаимодействовать с ^{17}O или ^{18}O с образованием дополнительных нейтронов, которые в свою очередь вызывают вынужденные деления ^{239}Pu . Нейтроны (α, n) -реакций, имея множественность, равную 1, не могут сами по себе создавать отклик совпадений, но образованные нейтроны вынужденного деления с множественностью $\nu = 2,88$, способны на это. Величина этого отклика зависит от интенсивности источника альфа-излучения, плотности легких элементов, степени их перемешивания с альфа-излучателями, плотности делящихся изотопов, геометрии образца и, в общем случае, не пропорциональна количеству спонтанно делящихся анализируемых изотопов.

Размножение нейтронов внутренних источников нейтронов, обусловленное вынужденным делением, это тот же самый процесс, который приводит к критич-

ности. Неожиданным здесь является то, что эффекты размножения проявляются при анализе сравнительно малых образцов, масса которых весьма далека от критической. Даже десятиграммовый образец из металлического плутония способен давать увеличение в отклике совпадения, равное 5 %. Для образца металлического плутония с массой, равной 4000 г, что не слишком далеко от критичности, умножение полного количества нейтронов на выходе приблизительно равно 2, а умножение отклика совпадений приблизительно равно 10.

Влияние эффектов саморазмножения при анализе PuO_2 методами пассивных нейтронных совпадений проиллюстрировано на рис. 16.13 [33]. Данные показывают искривление, направленное вверх, и отклонение от прямой линии, определенной с помощью образцов с наименьшим количеством вещества, до 38 % для самых больших образцов, содержащих 779 г PuO_2 . В прошлом эффекты саморазмножения часто были замаскированы, поскольку в данных отсутствовали поправки на мертвое время электроники или из-за того, что рисовали прямую линию, которая, как казалось, проходит через большинство экспериментальных точек, даже если для самых маленьких образцов наклон не подходил. Последней погрешности можно легко избежать, занеся в таблицу отклик совпадений на грамм, как показано в столбце 3 табл. 16.2. В следующем разделе будут обсуждаться другие данные, приведенные в табл. 16.2, которые описывают поправки результатов на саморазмножение.

16.8.2 Результаты вычислений

Эффект саморазмножения в образце может быть рассчитан с помощью метода Монте-Карло. Для образцов, перечисленных в табл. 16.2, в столбцах 5-9 приведены результаты таких вычислений, которые были проведены с помощью вычислительной программы, реализующей метод Монте-Карло и описанной в работе [33]. Однако сам детектор не был тщательно промоделирован, поскольку было необходимо получить только значение чистого умножения нейтронов утечки через поверхность, окружающую образец. Вычислительная программа Монте-Карло производит оценку исходных нейтронов (α, n)-реакций или нейтронов спонтанного деления с помощью следующего соотношения:

$$\alpha = N_\alpha / v_s N_s, \quad (16.28)$$

где N_α — число (α, n) реакций;

N_s — число событий спонтанного деления.

Значения для величины α , полученные с помощью уравнения (16.32) или (16.35), приведены в столбце 4 табл. 16.2. Каждая цепочка вынужденных делений была полностью проанализирована. С помощью вычислительной программы Монте-Карло рассчитывались значения умножения нейтронов утечки M_L (определение было приведено в главе 14), которое связано с вероятностью вынужденного деления p следующим соотношением:

$$M_L = \frac{1 - p}{1 - p v_1}. \quad (16.29)$$

Рассчитанные значения M_L приведены в столбце 5 табл. 16.2. Эти значения являются отношениями, с помощью которых увеличивается полное число отсче-

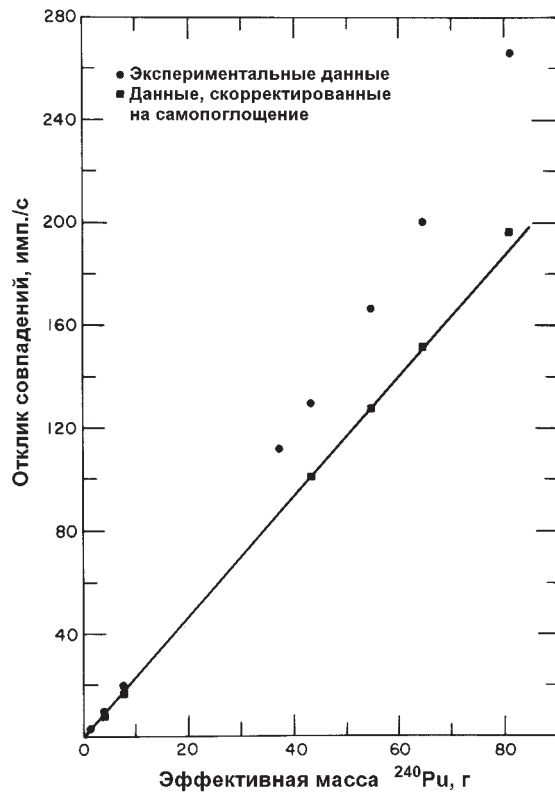


Рис. 16.13. Отклик совпадений, полученный по стандартным образцам PuO_2 . Направленная вверх кривизна верхних точек на графике обусловлена саморазмножением в PuO_2 . Вычисления методом Монте-Карло, описанные в тексте, были выполнены для всех образцов, кроме первого и четвертого, чтобы определить поправку на саморазмножение путем подгонки прямой к данным

тов за счет умножения, связанного с утечкой, поглощением, делением и отражением, которые принимаются во внимание. Для простоты в дальнейшем умножение нейтронов утечки будем обозначать M .

С помощью этой процедуры был также рассчитан поправочный коэффициент совпадений

$$CF = 1 + f_{sf} + f_{\alpha n}, \quad (16.30)$$

где $1 + f_{sf}$ — поправка отклика совпадений на чистое размножение нейтронов спонтанного деления;

$f_{\alpha n}$ — дополнительная поправка на чистое размножение нейтронов только от (α, n) -реакций.

В табл. 16.2 столбцы 6 и 7 показывают относительные величины этих двух эффектов размножения нейтронов вынужденного деления для образцов PuO_2 . В столбце 8 приведен полный поправочный коэффициент CF , а в столбце 9 показано, что скорректированный отклик совпадений, нормированный на массу материала, является почти постоянной величиной.

С помощью вычислительной программы, описанной выше, была проведена серия расчетов для выяснения влияния на величину поправочного коэффициента массы образца, его плотности, изотопного состава, а также содержания влаги. Результаты в виде графиков приведены на рис. 16.14 [33]. Все вычисления проводились для вариаций параметров образца PuO_2 вокруг произвольно выбранных

Таблица 16.2 – Поправочные коэффициенты на саморазмножение для образцов двуокиси плутония, приведенных на рис. 16.13. Столбцы 5-9 получены из расчетов Монте-Карло, а столбцы 10, 11 – из отношения R/Г.

1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11
Масса образца, г	Эффективная масса ^{240}Pu , %	Отклик совпадений, имп./Г·с	α^*	Коэффициент умножения нейтронов утечки M_L	f_{sf}^{**}	f_{cm}^{***}	Поправочный коэффициент CF	Скорректированный отклик/Г·с	M_L	CF
20	6,0	2,35(2)	0,66				1,02(1)	2,31(3)		
60	6,4	2,42(2)	1,43	1,005	0,024	0,020	1,04(1)	2,32(3)	1,003	1,03
120	6,4	2,53(2)	1,36	1,010	0,049	0,035	1,08(1)	2,33(3)	1,012	1,08
480	7,8	2,99(3)	0,74				1,28(1)	2,34(4)	1,044	1,26
459	9,5	2,98(3)	0,64	1,046	0,192	0,068	1,26(1)	2,36(4)	1,048	1,28
556	9,9	3,03(3)	0,62	1,049	0,215	0,075	1,29(1)	2,35(4)	1,043	1,25
615	10,6	3,08(3)	0,60	1,056	0,260	0,084	1,34(1)	2,30(4)	1,052	1,30
779	10,4	3,26(3)	0,61	1,061	0,285	0,095	1,38(1)	2,36(4)	1,070	1,41

* Отношение числа нейтронов, образованных в (α, n)-реакциях, к числу нейтронов, образованных в результате спонтанного деления.

** Поправка на размножение нейтронов спонтанного деления.

*** Поправка на размножение нейтронов (α, n)-реакций.

значения массы, равного 800 г, и плотности, составляющей 1,3 г/см³. Этот образец содержит 706 г плутония при 10 % ²⁴⁰Pu_{эфф} и 1 вес.% воды и упакован в контейнер с внутренним диаметром, равным 8,35 см. При вычислениях варьировался только один параметр. В частности, при вариации массы и плотности высота засыпки подбиралась так, чтобы сохранялось значение полной массы материала. При вариациях содержания H₂O, плотность образца подбиралась так, чтобы сохранить объем. На рис. 16.14 показано, что корректировка отклика совпадений необходима даже для маленьких масс и низких значений плотности материала. Из рис. 16.14 видно, что поправочные коэффициенты совпадений заметны даже при низких значениях массы и плотности.

Кривые на рис. 16.14 могут быть использованы для оценки поправочных коэффициентов совпадений для других подобных образцов оксида плутония. Точный диапазон применимости неизвестен. Непосредственно по программе Монте-Карло были рассчитаны поправочные коэффициенты для всех образцов, приведенных в табл. 16.2, за исключением первого и четвертого, для которых результаты были получены с помощью экстраполяции кривых, приведенных на рис. 16.14.

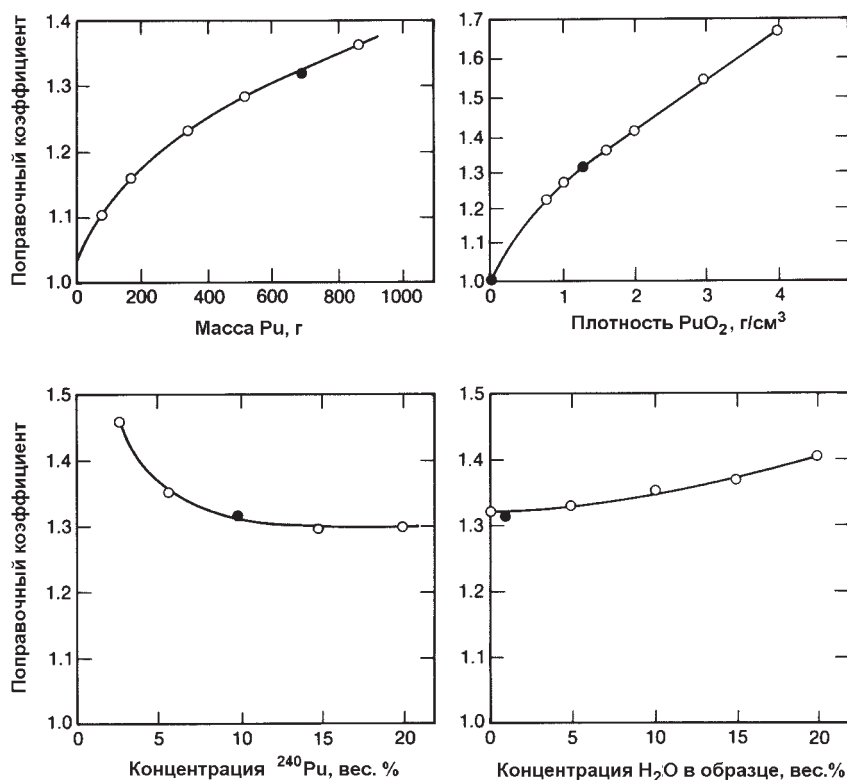


Рис. 16.14. Зависимости поправочных коэффициентов на саморазмножение от различных параметров, полученные с помощью расчетов методом Монте-Карло при регистрации совпадений для PuO₂. Сплошные точки на графике соответствуют номинальным значениям параметров

16.8.3 Влияние различных эффектов на отклик сдвигового регистра

Можно записать выражения для оценки влияния эффекта саморазмножения на отклик сдвигового регистра. Полная скорость счета нейтронов T после вычитания скорости счета фона b может быть представлена в виде уравнения

$$T - b = m_{240} (473 \text{ делений} / \text{с} \cdot \text{г}) \varepsilon M v_s (1 + \alpha), \quad (16.31)$$

где m_{240} — эффективная масса ^{240}Pu ;

ε — эффективность детектора;

M — умножение нейтронов утечки;

v_s — множественность нейтронов спонтанного деления;

α — определяется уравнением (16.28).

Если все другие величины известны, то значение α может быть определено, инвертируя уравнение (16.31):

$$1 + \alpha = (T - b) / m_{240} (473 \text{ делений} / \text{с} \cdot \text{г}) \varepsilon M v_s. \quad (16.32)$$

Скорость счета совпадений R дается следующими уравнениями [34]:

$$R = m_{240} (473 \text{ делений} / \text{с} \cdot \text{г}) \varepsilon^2 \frac{\overline{v(v-1)}}{2} F, \quad (16.33)$$

$$\overline{v(v-1)} = M^2 \left[\frac{v_s(v_s-1)}{1 + \alpha v_s} + \frac{(M-1)}{v_1-1} \frac{(1+\alpha)}{1 + \alpha v_s} v_s \overline{v_1(v_1-1)} \right], \quad (16.34)$$

где $\overline{v_s(v_s-1)}$ и $\overline{v_1(v_1-1)}$ — вторые приведенные моменты распределений множественности спонтанного и вынужденного делений, соответственно.

Уравнение (16.33) подобно уравнению (16.15), где F представляет долю измеренных совпадений, $e^{-P/\tau}(1 - e^{-G/\tau})$. Эти уравнения предполагают, что все цепочки деления, произведенные от исходного деления, должны происходить одновременно внутри разрешающего времени счетчика совпадений. Это предположение, которое называют "концепцией суперделения" [5], справедливо для счетчиков тепловых нейтронов из-за их длительного времени затухания.

Из уравнений (16.31) и (16.33) для T и R , а также из данных столбцов 5 и 8 табл. 16.2 вытекает, что эффекты саморазмножения влияют на счет совпадений значительно сильнее, чем на регистрацию полной скорости счета. В качестве простой иллюстрации этого обстоятельства допустим, что в результате одного спонтанного деления освобождается два нейтрона, один из которых поглощается делющимся ядром, которое в свою очередь при делении образует три нейтрона на одно деление. Полное число нейтронов увеличилось от двух до четырех ($M=2$). Однако отклик совпадений увеличился от одного до 6 ($CF=6$). Таким образом, за счет размножения увеличилось отношение R/T . Лабораторные измерения показали, что отношение R/T может служить в качестве меры размножения. Это отношение является основой для простой поправки на саморазмножение, процедуры которой описаны в следующем разделе.

16.8.4 Простой коэффициент поправки на саморазмножение

Поскольку для определения саморазмножения для каждого анализируемого образца проводить расчеты Монте-Карло обычно невозможно, существует острая необходимость для поправки на саморазмножение, которая может быть определена для каждого образца по измеренным параметрам R и T . Как упоминалось ранее, отношение R/T чувствительно к размножению в образце, поэтому можно использовать R для анализа, а R/T — для поправки на саморазмножение. Процедура вычисления такой поправки включает следующие шаги:

Шаг 1. Анализируют небольшой стандартный образец (10 или 20 г), который в некотором приближении может рассматриваться как образец, не имеющий размножения. Используют ту же самую геометрию измерений и те же установки электроники, которые будут использованы для анализа больших образцов, которые будут проводиться на шаге 2. Это измерение небольшого стандартного образца даст значения R_0 , T_0 и α_0 . Если образец без саморазмножения является чистым металлом, то $\alpha_0 = 0$. В противном случае значение α_0 можно определить из уравнения (16.32) при $M = 1$. (Можно также использовать стандартный образец, имеющий размножение, если достаточно точно определить относительные поправочные коэффициенты [35]).

Шаг 2. Теперь анализируют неизвестный образец с размножением, который требует поправки на саморазмножение. Это измерение дает значения величин R и T . Если образец является чистым металлом, то $\alpha = 0$. Если образец имеет тот же состав, что и небольшой стандартный образец, используемый на шаге 1, то $\alpha = \alpha_0$. Если образец является чистой двуокисью плутония, то на основании данных табл. 11.1 и 11.3, можно вычислить значение α , используя следующую формулу:

$$\alpha = \frac{13400 f_{238} + 38,1 f_{239} + 141 f_{240} + 1,3 f_{241} + 2,0 f_{242} + 2690 f_{Am-241}}{1020 (2,54 f_{238} + f_{240} + 1,69 f_{242})}, \quad (16.35)$$

при условии, что известна изотопная доля f каждого изотопа, а также ^{241}Am . Для расчета коэффициента поправки вычисленного значения α на содержание основных примесей, которые имеют высокие сечения для (α, n) -реакции, если концентрации этих примесей известны, можно использовать уравнение (11.7). Для неоднородных или плохо охарактеризованных плутониевых оксидов, скрапа или отходов, для которых значение α невозможно определить ни одним из перечисленных выше методов, эта поправку на саморазмножение использовать нельзя.

Шаг 3. Вычисляют отношение

$$r = \frac{R/T}{R_0/T_0} \frac{(1+\alpha)}{(1+\alpha_0)}. \quad (16.36)$$

Это отношение будет больше единицы для образцов с размножением при $M > 1$, поскольку саморазмножение увеличивает R сильнее, чем T . Отношение r не зависит от эффективности детектора, времени затухания в блоке детектирования, а также ширины ворот схемы совпадений. Заметим, что все скорости счета в уравнении (16.36) должны быть скорректированы на фон и мертвое время электроники.

Шаг 4. Умножение нейтронов утечки M определяют по следующей формуле:

$$2,062 (1+\alpha)M^2 - [2,062 (1+\alpha) - 1]M - r = 0. \quad (16.37)$$

Уравнение (16.37) выводится из уравнений (16.33) и (16.34) [36, 37].

Шаг 5. Поправочный коэффициент совпадений на саморазмножение CF равен $M\gamma$. Окончательно получают:

$$\begin{aligned} T(\text{скорректированная на саморазмножение}) &= T / M \\ R(\text{скорректированная на саморазмножение}) &= R / M\gamma. \end{aligned} \quad (16.38)$$

Эта поправка на саморазмножение не имеет регулируемых параметров и является независимой от геометрии. Например, предположим, что два плутониевых образца подносятся ближе и ближе друг к другу. В этом случае величина M , длина цепочки нейтронов вынужденного деления, средняя эффективная множественность и отношение R/T будут возрастать. Уравнение (16.37) будет давать большие значения M , а уравнение (16.38) большие значения поправочных коэффициентов. Примеры приведены в работе [33] и на рис. 17.8.

Когда для линеаризации градуировочной кривой используется уравнение (16.38), следовательно

$$m_{240} = R / kM\gamma, \quad (16.39)$$

то уравнения (16.31), (16.36) и (16.39) требуют, чтобы градуировочная постоянная k и эффективность детектора ϵ были связаны следующим соотношением:

$$k = \epsilon v_s (473 \text{ делений} / \text{с} \cdot \text{г}) \frac{R_0}{T_0} (1 + \alpha_0). \quad (16.40)$$

Это соотношение не имеет большого практического значения, так как k обычно получают на основе проведения градуировки, но оно может быть полезно для диагностики, чтобы показать, правильно ли были измерены эффективность детектора или небольшой стандартный образец.

16.8.5 Применения и ограничения простой поправки

Несмотря на то, что поправочные коэффициенты, полученные в соответствии с уравнениями (16.37) и (16.38), обеспечивают полную поправку без регулируемых параметров, при выводе простых уравнений были сделаны следующие предположения:

1. Предполагалось, что эффективность детектора является постоянной по всему объему образца. Это не всегда имеет место, но это становится легче реализовать при использовании таких приборов, как усовершенствованный высокоуровневый счетчик совпадений нейтронов HLNCC-II, который будет описан в разделе 17.2.3.

2. Предполагалось, что нейтроны (α, n) -реакций и нейтроны спонтанного деления имели одинаковые энергетические спектры, так что эффективность детектора ϵ , вероятность деления p и множественность вынужденных делений v_1 будут иметь одинаковые значения для обоих источников нейтронов. В общем случае это не выполняется, хотя для оксида плутония нейтроны (α, n) -реакций и нейтроны спонтанного деления имеют близкие средние энергии (2,03 и 1,96 МэВ, соответственно), но различные формы спектра.

3. Предполагалось, что все цепочки деления протекают одновременно в течение времени затухания отклика в детекторе. Это не справедливо для нейтронов, которые возвращаются в образец из детектора (отраженные нейтроны) [5].

Эти приближения вносят погрешности в значения поправок. Значения величины M , полученные с помощью уравнения (16.37), могут отличаться от значений, полученных по программе Монте-Карло. Значения поправочного коэффициента совпадений $CF=Mg$ обычно лучше, по-видимому, из-за того, что некоторые погрешности исключаются при использовании отношений величин. Поправка обычно позволяет снизить погрешность результатов до 2-3 %, что неплохо, но превышает относительное стандартное отклонение результатов измерений (порядка 0,5 %).

Результаты использования простой поправки на саморазмножение приведены в табл. 16.2 (столбцы 10 и 11), а также на рис. 17.8, 17.19, 17.20 и 17.22 для металлического плутония, PuO_2 и растворов нитрата плутония. Хорошие результаты были получены при анализе PuO_2 [22], для металлического плутония [33, 36], а также для топливных сборок реакторов-размножителей [38].

Приведенные выше примеры использования этих поправок показывают, что хорошие результаты (обычно с погрешностью порядка 2-3 %) могут быть получены для хорошо охарактеризованных образцов, несмотря на предположения, сделанные при выводе уравнений. Однако необходимость знания значения α , отношения числа нейтронов (α, n)-реакций к числу нейтронов спонтанного деления для каждого анализируемого образца, служит ограничением применимости этой методики. Для скрапа, отходов, оксидов с примесями или металлов с окисленной поверхностью значение α определить невозможно. Любая погрешность при выборе значения α приводит к заметной погрешности корректируемых результатов анализа. В таких случаях эту поправку на размножение следовало бы использовать только для диагностических целей. Крик [39] обнаружил, что двухпараметрические градуировочные кривые без поправки на саморазмножение дают наилучшую точность результатов анализа для многих классов оксидов, где значение α определить невозможно, а плотность и форма образца фиксированы.

Главным ограничением простой поправки на размножение является то, что при каждом анализе измеряются только два параметра: R и T . Число неизвестных переменных равно, по крайней мере, трем: масса образца, коэффициент саморазмножения образца и интенсивность (α, n)-реакции. Дальнейшего улучшения поправок на размножение можно достичь при условии, что счетчики совпадений будут измерять третий параметр, а именно — тройные совпадения [23, 33].

16.9 ДРУГИЕ ЭФФЕКТЫ МАТРИЦЫ

Доминирующим эффектом матрицы при пассивной регистрации нейтронных совпадений обычно является процесс саморазмножения, описанный в разделе 16.8. Если можно правильно применить поправки на потерю скорости счета из-за электроники и на саморазмножение, то отклик совпадений обычно является линейной функцией от массы образца. Однако на результаты анализа могут влиять другие эффекты матрицы и иногда их можно проглядеть. Эти эффекты обобщаются в данном разделе на основе работы [40].

1. (α, n)-загрязнения

Для плутониевых образцов наиболее важными (α, n)-источниками являются кислород и фтор. Обычно содержание фтора составляет от 10 до 400 млн.⁻¹, в то время как содержание кислорода (в виде влаги) может превышать несколько процентов. Расчетные оценки влияния фтора и воды на общую скорость счета нейтронов были приведены в разделе 14.2.3 главы 14. Такие (α, n)-загрязнения могут приводить к смещению результатов анализа до нескольких процентов. Если их концентрации известны, то можно учесть их влияние в виде поправки на саморазмножение.

2. Содержание водорода

Водород, содержащийся в воде, влияет на отклик нейтронных совпадений, смещая энергетический спектр нейтронов (см. главу 14, раздел 14.2.4). Это приводит к увеличению эффективности детектора и саморазмножения в образце. Первый из вышеперечисленных эффектов может быть минимизирован хорошей конструкцией детектора, второй — учитывается с помощью поправки на размножение.

3. Эффекты стенок контейнера

Отражение и рассеяние нейтронов стенками контейнера приводит к увеличению эффективности детектора и саморазмножения образца. Наблюдалось увеличение скорости счета совпадений до 7 %. Эффекты контейнера можно оценить, проводя измерения, помещая внутри пустого контейнера калифорниевый источник, а потом проводя измерения источника без контейнера.

4. Влияние урана на анализ плутония

Добавление урана к плутонию (смешанные оксиды) приводит к следующим эффектам: дополнительному размножению в ²³⁵U, уменьшению размножения в плутонии за счет его "разбавления", дополнительному размножению быстрых нейтронов в ²³⁸U. Несмотря на различные множественности делений ²³⁹Pu, ²³⁵U и ²³⁸U поправка на размножение хорошо работает для смесей плутония и урана, если нет дополнительных неизвестных источников (α, n)-реакций.

5. Замедление и поглощение нейтронов (самоэкранирование)

В растворах нитрата плутония наблюдалось замедление, приводящее к увеличенному поглощению нейтронов (глава 17, раздел 17.2.7). При активном счете совпадений урана поглощение нейтронов и саморазмножение нейтронов являются сильными и взаимоисключающими эффектами. Присутствие обоих эффектов часто приводит к почти линейным градуировочным кривым (глава 17 рис. 17.24 и 17.29).

6. Поглотители нейтронов

Бор, кадмий и некоторые другие элементы имеют высокие сечения захвата тепловых нейтронов и потому могут поглощать значительную их часть. Проблемы поглотителей нейтронов наблюдались при активном анализе свежих тепло-выделяющих сборок для реакторов на легкой воде.

7. Геометрия образца

Если эффективность регистрации непостоянна по объему образца, тогда отклик совпадений может меняться с изменением его геометрии. Пассивные счетчики нейтронных совпадений в настоящее время конструируются так, что весь образец находится в зоне одинаковой эффективности. Для активных счетчиков нейтронных совпадений расстояние "источник-образец" очень важно, и поэтому согласованное расположение образца весьма существенно.

8. Плотность образца

Изменения в плотности образцов оксида плутония из-за оседания или встряхивания в процессе транспортировки или работы с образцами могут приводить к изменению отклика совпадений (при пассивном анализе) более чем на 10 %. Поправка на размножение может учесть эти изменения для образцов похожего состава, если они находятся в области одинаковой эффективности регистрации. При активном методе регистрации нейтронных совпадений изменения плотности влияют как на саморазмножение, так и на самоэкранирование нейтронов. Подходящей поправки не существует.

9. Матричные эффекты в скрапе и в отходах

Здесь полезно знать состав матрицы и какие из упомянутых выше эффектов имеют место. Для материалов, содержащих плутоний, отклик совпадений обычно более надежен, чем отклик полной скорости счета, но он может дать только верхний предел количества ^{240}Pu . В общем случае полезно измерить как полную скорость счета, так и скорость счета совпадений, и использовать отклик полной скорости счета или отношение совпадений к полной скорости счета для диагностики, которая помогает в интерпретации отклика совпадений.

ЛИТЕРАТУРА

1. M.S. Krick, " ^{240}Pu -effective Mass Formula for Coincidence Counting of Plutonium with Shift Register Electronics," in "Nuclear Safeguards Program Status Report, May–August 1977," J. L. Sapir, Comp., Los Alamos Scientific Laboratory report LA-7030-PR (1977), p.16.
2. C.H. Westcott, "A Study of Expected Loss Rates in the Counting of Particles from Pulsed Sources," *Royal Society of London*, A 194 (1948).
3. C.H. Vincent, "The Pulse Separation Spectrum for the Detection of Neutrons from a Mixture of Fissions and Single-Neutron Events," *Nuclear Instruments and Methods* 138,261 (1976).
4. N. Pacilio, "Reactor Noise Analysis in the Time Domain," AEC Critical Review Series TID 24512 (1969).
5. K. Boehnel, "Determination of Plutonium in Nuclear Fuels Using the Neutron Coincidence Method" KFK2203, Karlsruhe, 1975, and AWRE Translation 70 (54/4252), Aldermaston, 1978.
6. J. Jacquesson, *Journal of Physics* 24, Supp. to No. 6, 112A (1963).
7. G. Birkhoff, L. Bondar, and N. Coppo, "Variable Deadtime Neutron Counter for Tamper-Resistant Measurements of Spontaneous Fission Neutrons," Eurochemic Technical Report EUR-4801e (1972).

8. K. Lambert and J. Leake, "A Comparison of the VDC and Shift Register Neutron Coincidence Systems for ^{240}Pu Assay," *Nuclear Materials Management* VII (4), 87 (1979).
9. W. Stanners, "Brief Note on Analysis of VDC Results," Commission of the European Communities, Luxembourg, CEL-DXIII-E (1977).
10. N. Ensslin, M. Evans, H. Menlove, and J. Swansen, "Neutron Coincidence Counters for Plutonium Measurements," *Nuclear Materials Management* VII (2), 43(1978).
11. A. Prosdocimi and P. Hansen, "Evaluation of the Physical Performances of Neutron Variable Deadtime Counters, Part II—Neutron Physics," Joint Research Centre report FMM/64 (1981).
12. E.W. Lees and B.W. Hooten, "Variable Deadtime Counters, Part III: A Critical Analysis," Atomic Energy Research Establishment report R9701 (1980).
13. C.V. Strain, "Potential and Limitations of Several Neutron Coincidence Equipments," Naval Research Laboratory memorandum 2127 (1970).
14. R. Sher, "Operating Characteristics of Neutron Well Coincidence Counters," Brookhaven National Laboratory report 50332 (1972).
15. E.J. Dowdy, C.N. Henry, A.A. Robba, and J.C. Pratt, "New Neutron Correlation Measurement Techniques for Special Nuclear Material Assay and Accountability," International Atomic Energy Agency report IAEA-SM-231/69 (1978).
16. E.J. Dowdy, G.E. Hansen, A.A. Robba, and J.C. Pratt, "Effects of (a,n) Contaminants and Sample Multiplication on Statistical Neutron Correlation Measurements," Proc. 2nd Annual ESARDA Symp. on Safeguards and Nuclear Material Management, Edinburgh, U.K., March 26-29, 1980.
17. A. Robba, E. Dowdy, and H. Atwater, "Neutron Multiplication Measurements Using Moments of the Neutron Counting Distribution," *Nuclear Instruments and Methods* 215,473 (1983).
18. K.V. Nixon, E. Dowdy, S. France, D. Millegan, and A. Robba, "Neutron Multiplication Measurement Instrument," *IEEE Transactions on Nuclear Science* NS-30 (I) (1983).
19. M. Stephens, J. Swansen, and L. East, "Shift Register Neutron Coincidence Module," Los Alamos Scientific Laboratory report LA-6121-MS (1975).
20. J. Swansen, N. Ensslin, M. Krick, and H. Menlove, "New Shift Register for High Count Rate Coincidence Applications," in "Nuclear Safeguards Research Program Status Report, September—December 1976," J. L. Sapir, Comp., Los Alamos Scientific Laboratory report LA-6788-PR (June 1977), p.4.
21. J. Swansen, P. Collinsworth, and M. Krick, "Shift Register Coincidence Electronics System for Thermal Neutron Counters," *Nuclear Instruments and Methods* 176,555 (1980).
22. K. Lambert, J. Leake, A. Webb, and F. Rogers, "A Passive Neutron Well Counter Using Shift Register Coincidence Electronics," Atomic Energy Research Establishment report 9936 (1982).
23. M. Krick and J. Swansen, "Neutron Multiplicity and Multiplication Measurements," *Nuclear Instruments and Methods* 219,384 (1984).

24. M. Krick and H. Menlove, "The High-Level Neutron Coincidence Counter User's Manual," Los Alamos Scientific Laboratory report LA-7779-M (1979).
25. M.S. Krick, "Calculations of Coincidence Counting Efficiency for Shift-Register and OSDOS Coincidence Circuits," in "Nuclear Safeguards Research and Development Program Status Report, May-August 1977," Los Alamos Scientific Laboratory report LA-7030-PR (1978), p.14.
26. J. Swansen and N. Ensslin, "A Digital Random Pulser for Testing Nuclear Instrumentation," *Nuclear Instruments and Methods* 188, 83 (1981).
27. E. Adams, "Deadtime Measurements for the AWCC," Los Alamos National Laboratory memorandum Q-1-82-335 to H. Menlove (April 29, 1982).
28. J. Swansen and N. Ensslin, "HLNCC Shift Register Studies," in "Nuclear Safeguards Research and Development Program Status Report, April-June 1980," G. R. Keepin, Ed., Los Alamos Scientific Laboratory report LA-8514-PR (February 1981), p.11.
29. C.H. Vincent, "Optimization of the Neutron Coincidence Process for the Assay of Fissile Materials," *Nuclear Instruments and Methods* 171,311 (1980).
30. H. Menlove, J. Swansen, and E. Adams, "Coincidence Counting Deadtime Study," Los Alamos National Laboratory memorandum Q-1-83-461 (June 27, 1983).
31. J. E. Swansen, "Deadtime Reduction in Thermal Neutron Coincidence Counters," Los Alamos National Laboratory report LA-9936-MS (March 1984).
32. H.O. Menlove, "Description and Operation Manual for the Active Well Coincidence Counter," Los Alamos Scientific Laboratory report LA-7823-M (1979), p.25.
33. N. Ensslin, J. Stewart, and J. Sapir, "Self-Multiplication Correction Factors for Neutron Coincidence Counting," *Nuclear Materials Management* VIII (2), 60 (1979).
34. K. Boehnel, "The Effect of Multiplication on the Quantitative Determination of Spontaneously Fissioning Isotopes by Neutron Correlation Analysis," *Nuclear Science and Engineering*, 90, 75-82 (1985).
35. M.T. Swinhoe, "Multiplication Effects in Neutron Coincidence Counting: Uncertainties and Multiplying Reference Samples," U.K. Atomic Energy Commission report AERE-R 11678, Harwell, March 1985.
36. N. Ensslin, "A Simple Self-Multiplication Correction for In-Plant Use," Proc. 7th ESARDA Symposium on Safeguards and Nuclear Material Management, Liege, Belgium, 21-23 May 1985.
37. W. Hage and K. Caruso, "An Analysis Method for the Neutron Autocorrelator with Multiplying Samples," Joint Research Centre, Ispra, Italy, report EUR 9792 EN (1985).
38. G. Eccleston, J. Foley, M. Krick, H. Menlove, P. Goris, and A. Ramalho, "Coincidence Measurements of FFTF Breeder Fuel Subassemblies," Los Alamos National Laboratory report LA-9902-MS (1984).
39. M.S. Krick, "Neutron Multiplication Corrections for Passive Thermal Neutron Well Counters," Los Alamos Scientific Laboratory report LA-8460-MS (1980).
40. M.S. Krick, R. Schenkel, and K. Boehnel, in "Progress in Neutron Coincidence Counting Techniques," report of the IAEA Advisory Group Meeting, Vienna, Austria, 7-11 October 1985, IAEA Dept. of Safeguards General Report STR-206.

Глава 17

Приборы нейтронных совпадений и их применение

*Х. О. Менлав
(Переводчик И. Н. Сазонов)*

17.1 ОСНОВЫ ПРОЕКТИРОВАНИЯ УСТАНОВОК НЕЙТРОННЫХ СОВПАДЕНИЙ

В течение последних лет для неразрушающего анализа (НРА) ядерных материалов широкое распространение получил метод регистрации нейтронных совпадений. Привлекательность этого метода обусловлена прежде всего хорошей проникающей способностью быстрых нейтронов и уникальным соответствием связанных во времени нейтронов процессу деления ядерного материала и, таким образом, его составу.

При проектировании установок нейтронных совпадений в первую очередь необходимо обратить внимание на следующее:

- тип нейтронного детектора;
- материалы замедлителя и защиты;
- диапазон масс и другие характеристики измеряемых образцов.

В общем случае детекторы нейтронных совпадений должны обладать более высокой эффективностью регистрации по сравнению с системами регистрации полного потока нейтронов ввиду необходимости регистрировать по крайней мере два нейтрона. Это требование делает скорость счета совпадений пропорциональной квадрату эффективности детектора. Высокая эффективность обычно достигается хорошей геометрией "детектор-источник" (например, 4π -геометрия или колодезный детектор), а также использованием эффективных детекторов тепловых нейтронов.

В настоящее время большинство установок нейтронных совпадений используют газоразрядные счетчики нейтронов на основе ^3He ввиду их высокой эффективности, надежности, стойкости и низкой чувствительности к гамма-фону. Счетчики, наполненные BF_3 , также иногда используются для уменьшения стоимости или для работы в сильных гамма-полях, однако их эффективность почти в два раза ниже, чем у ^3He -счетчиков. Основным недостатком применения счетчиков с наполнением ^3He и BF_3 в методе нейтронных совпадений состоит в том, что нейтроны должны быть предварительно замедлены путем рассеяния до тепловой энергии перед регистрацией в счетчике, что замедляет процесс, приводя к довольно большому времени жизни нейтронов τ в детекторе. Как результат, ширина ворот совпадений G в электронной схеме должна иметь достаточно большую величину (от 10 до 100 мкс), чтобы зарегистрировать совпадения связанных во време-

ни нейтронов. В итоге большая ширина ворот приводит к увеличению статистической погрешности при высоких скоростях счета.

Для оптимизации конструкции детекторов нейтронных совпадений на основе ^3He -счетчиков было использовано компьютерное моделирование переноса нейтронов с применением методов Монте-Карло. При проектировании должны быть приняты во внимание следующие параметры:

- полная эффективность к нейтронам спонтанного деления;
- чувствительность к материалам матрицы образца;
- время жизни нейтронов в материале замедлителя детектора;
- вес и стоимость оборудования.

Установки нейтронных совпадений применяются для анализа контейнеров в широком диапазоне размеров и масс плутония, что делает необходимым уделить особое внимание различным параметрам для достижения заданных характеристик детектора. В главе 14 приведены примеры оптимизации конструкции блоков детектирования тепловых нейтронов при помощи расчетов методом Монте-Карло.

В некоторых системах регистрации нейтронных совпадений использовались детекторы отдачи быстрых нейтронов, что позволяет избежать проблемы, связанной с большим временем жизни тепловых нейтронов. Примерами таких детекторов являются жидкие и пластмассовые сцинтилляторы, а также детекторы отдачи, наполненные газом ^4He . К сожалению сцинтилляторы чувствительны к фону гамма-излучения, а детекторы на основе ^4He относительно низко эффективны. Примерами систем регистрации совпадений на основе пластмассовых сцинтилляторов являются такие установки как "Рэндом драйвер" (Random Driver), система для анализа изотопных источников ISAS (Isotopic Source Assay System), система для анализа делящихся изотопов ISAF (Isotopic Source Assay Fissile) и ранние модели сканеров топливных стержней. Все они описаны в соответствующих публикациях [1-3].

В этой главе акцент сделан на системы, регистрирующие совпадения тепловых нейтронов, ввиду их преобладания в практическом использовании. Многие из этих систем были отработаны до стадии промышленного изготовления оборудования, которое сейчас используется в условиях производства ядерных материалов. В настоящее время инспектора также используют портативное оборудование для проверки содержания ядерного материала, заявленного оператором.

В связи с широким диапазоном применений было необходимо разработать различные системы, пригодные для анализа разнообразных типов образцов. В противоположность методикам, используемым в химическом анализе, где проба "приспосабливается" к измерительному средству, в неразрушающем анализе аппаратура приспособляется к образцу. В последующих разделах описывается аппаратура, принципы ее работы и области применения. Работа всех этих приборов основана на методе регистрации нейтронных совпадений с использованием электронных устройств временного анализа.

17.2 ПАССИВНЫЕ СИСТЕМЫ РЕГИСТРАЦИИ НЕЙТРОННЫХ СОВПАДЕНИЙ

Аппаратура для нейтронного анализа была стандартизована путем использования метода нейтронных совпадений как основы разнообразных приборов для различных областей применений. Электронная схема сдвигового регистра [4], первоначально разработанная для высокоуровневого счетчика нейтронных совпадений HLNCC (High Level Neutron Coincidence Counter) [5], затем была приспособлена как для пассивной, так и для активной аппаратуры, предназначенной для контроля плутониевых материалов в балк-форме, инвентарных образцов, таблеток, порошка, нитратов, высокообогащенного урана (ВОУ) и топливных сборок для материаловедческих реакторов (МР) и реакторов на легкой воде (ЛВР) и на основе смешанного оксидного уран-плутониевого топлива. Все это семейство аппаратуры использует стандартный блок сдвигового регистра. "Фамильное дерево" такого семейства, показанное на рис. 17.1, демонстрирует связь между стандартной электроникой (ствол), приборами контроля (ветви) и их многочисленными применениями. Во всех измерительных установках в качестве детекторов используются ^3He -счетчики, подобранные так, чтобы обеспечить одинаковые характеристики при одном напряжении питания. Таким образом, стандартный электронный блок может применяться в разных измерительных системах без изменения разъемов или параметров. Такая стандартизация существенно уменьшает проблемы, связанные с текущим ремонтом аппаратуры, наибольший удельный вес в котором имеет ремонт электроники. Одновременно упрощается обучение персонала, поскольку оператор, умея работать на HLNCC, может освоить работу на другом приборе из этого семейства после нескольких минут ознакомления с ним.

Перечень приборов со стандартным электронным блоком отбора нейтронных совпадений включает:

1. установку для контроля 200-литровых бочек со скрапом;
2. высокоуровневый счетчик нейтронных совпадений HLNCC для контроля плутониевых материалов в балк-форме;
3. специализированные блоки детектирования для контроля элементов и лотков сборок для быстрых критических стендов (БКС), топливных сборок реакторов-размножителей на быстрых нейтронах, стержней со смешанным оксидным топливом и емкостей с нитратом плутония;
4. счетчик совпадений для инвентарных образцов ISCC (Inventory Sample Coincidence Counter) для небольших образцов нитрата плутония, таблеток и порошка PuO_2 ;
5. установку для измерения раствора нитрата плутония непосредственно на технологической линии;
6. универсальный счетчик для сборок быстрых реакторов-размножителей (БР).

Эти и другие пассивные приборы и их применение описаны в разделах 17.2.1-17.2.8.

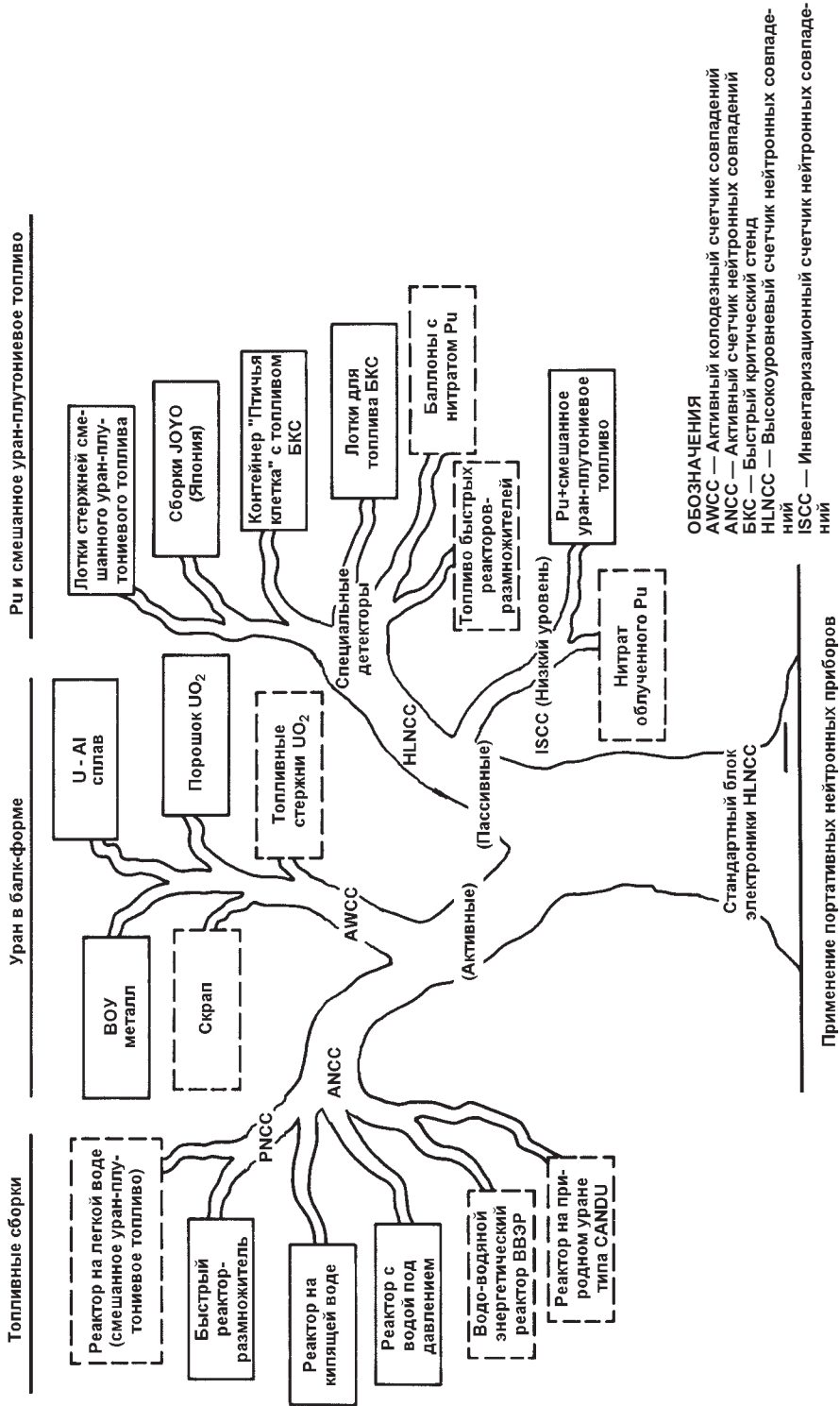


Рис. 17.1. "Дерево" семейства активных и пассивных установок нейтронных совпадений, основанных на стандартном блоке сдвигового регистра, разработанном для счетчика HLNCC, и их применения

17.2.1 Установка для контроля 200-литровых бочек

Первым применением метода нейтронных совпадений для измерений плутония была установка для контроля 200-литровых бочек [6]. Эта система была разработана для измерения спрессованного скрапа и отходов в 200-литровых бочках и коробках.

Материал не мог быть измерен традиционными химическими методами из-за его большой неоднородности.

Установка для контроля бочек, показанная на рис. 17.2, содержит BF_3 -счетчики, помещенные в полиэтиленовый замедлитель. Блок детектирования построен на основе полиэтиленового кольца толщиной 10 см, в котором расположены 36 штук BF_3 -счетчиков диаметром 5 см, причем сверху и снизу детектора имеются пластины из полиэтилена, в каждой из которых имеется по 9 штук BF_3 -счетчиков. Блок детектирования разделяется на две части, что позволяет помещать внутрь 200-литровую бочку. Верхняя и боковая поверхности детектора окружены слоем водяной защиты толщиной 30 см. На рис. 17.2 показан общий вид установки для 4π -контроля бочек в открытом (раздвинутом) виде с помещенной внутрь 200-литровой бочкой.

Первоначально детектор не содержал кадмиевого экрана внутри полиэтиленового кольца. Такая конфигурация обладает максимально возможной эффективностью регистрации нейтронов и, как следствие, большим временем жизни нейтронов в детекторе (измерено 125 мкс). Эта конфигурация пригодна для работы с низкой скоростью счета нейтронов, соответствующей менее, чем нескольким граммам плутония в контейнере. Измеренная эффективность регистрации одиночных нейтронов равнялась 12 %, а измеренная эффективность регистрации нейтронных совпадений составляла 1,5 %. При введении кадмиевого экрана внутрь полиэтиленового кольца время жизни нейтронов уменьшилось со 125 до ~50 мкс и, как и ожидалось, эффективности регистрации одиночных нейтронов и нейтронных совпадений также уменьшились.



Рис. 17.2. Пассивный счетчик нейтронных совпадений для 200-литровых бочек

Было установлено, что нейтроны, вызванные космическим излучением, образуют значительный фон совпадений в детекторе. Для Лос-Аламоса, находящегося на высоте около 2250 м над уровнем моря, этот фон совпадений составил $0,250 \pm 0,002$ имп./с, что соответствовало скорости счета от образца плутония массой 0,2 г (с содержанием 20 % ^{240}Pu). Этот фон совпадений ограничивает порог чувствительности детектора на уровне около 0,25 г плутония, если не проводить измерения множественности с поправкой на космический фон. Вблизи уровня моря, где расположено большинство предприятий по производству промышленного плутония, влияние космического излучения будет почти в 2 раза ниже. Скорость счета фона может также отчасти зависеть от массы и состава отходов в контейнере. Например, когда в установку поместили 6 свинцовых кирпичей (массой 77 кг) для измерения эффекта образования нейтронов от космических лучей на материалах с высоким атомным номером Z , наблюдалась скорость счета совпадений, превышающая фон на $0,91 \pm 0,02$ имп./с, которая эквивалентна 0,7 г плутония (с содержанием 20 % ^{240}Pu).

Для анализа отходов, содержащих плутоний, пассивный метод нейтронных совпадений более точен, чем метод регистрации полного потока нейтронов, т.к. он нечувствителен к дополнительному нейтронному излучению, возникающему в матрице за счет (α, n) -реакций. Однако чувствительность регистрации может быть меньше в зависимости от химической формы материала и фоновой скорости счета совпадений.

17.2.2 Высокоуровневый счетчик нейтронных совпадений HLNCC

В 1975 г. по инициативе Лос-Аламосской национальной лаборатории была начата разработка портативного счетчика нейтронных совпадений, позволяющего измерять контейнеры, содержащие до 2500 г PuO_2 . Детектор должен был иметь модульную конструкцию переменной конфигурации, легко приспособляемую под образцы с различной геометрией, такие как пластины или стержни. Разработка привела к созданию гексагональной модели установки, показанной на рис. 17.3. Показанный на рисунке промежуточный экран из кадмия был добавлен для снижения эффективности, времени жизни нейтронов в детекторе и чувствительности к матрице образца.

Установка HLNCC включает в себя шесть блоков счетчиков, причем каждый из них содержит по три ^3He -счетчика, размещенных в полиэтиленовом замедлителе. Счетчики диаметром 25 мм имеют активную длину 508 мм и наполнены газом под давлением 4 атм. Система имеет эффективность ~12 % и время жизни нейтронов 32 мкс [5].

Когда началась работа над установкой HLNCC, максимальное быстродействие электроники совпадений составляло обычно от 20 до 30 кГц. По этой причине параллельно была предпринята разработка быстродействующего портативного электронного блока сдвигового регистра. Электронный блок (рис. 17.4) содержит шесть электронных каналов, сдвиговый регистр (см. главу 16) и микропроцессор для передачи данных в программируемый калькулятор Hewlett Packard типа HP-97 или другой компьютер. Благодаря наличию интерфейса между сдвиговым регистром и программируемым калькулятором работа системы очень проста. Оператору необходимо только установить образец и нажать кнопку "ПУСК". Сбор данных, их преобразование, анализ погрешностей, градуировка и вывод результатов выполняются калькулятором.

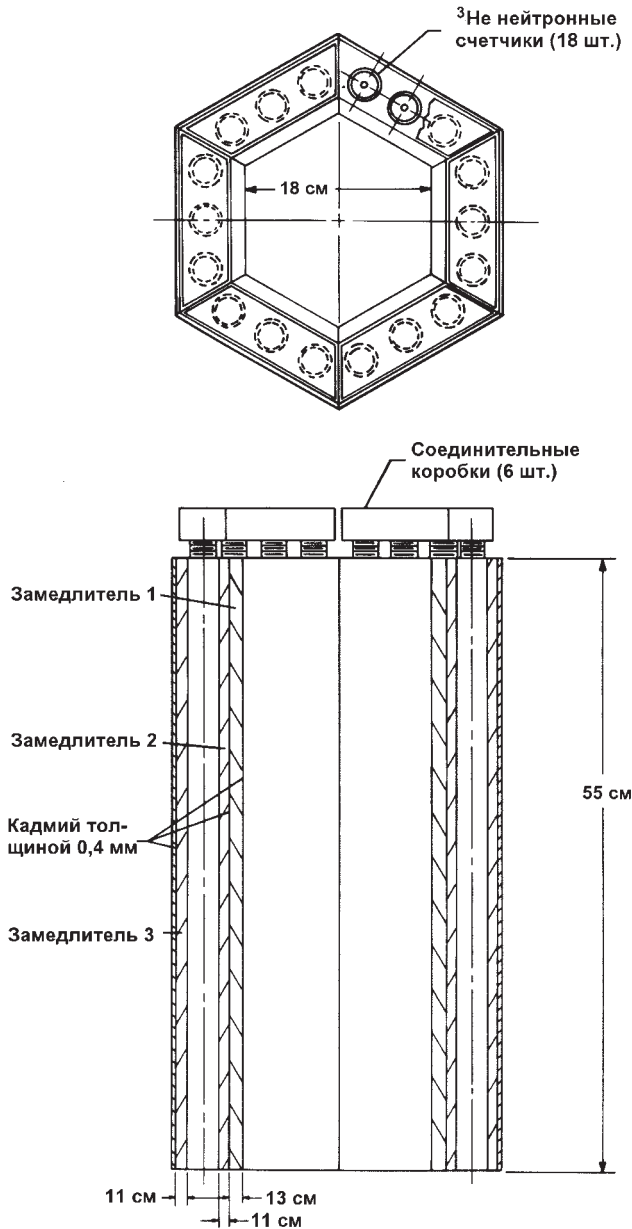


Рис. 17.3. Портативный высокоуровневый счетчик нейтронных совпадений HLNCC для анализа массивных образцов плутония

В течение последних 5 лет установка HLNCC использовалась для анализа большой номенклатуры образцов, включая контейнеры с порошком PuO_2 , смешанное уран-плутониевое топливо в виде порошка, таблеток и стержней, а также топливных элементов и лотков сборок для быстрых критических стенов. Максимальная заданная масса 2,5 кг плутония была превышена почти в 2 раза, и полная скорость счета превосходила 300000 имп./с. Для такой скорости счета необходима большая поправка на мертвое время (коэффициент поправки составляет от 3 до 4 для скорости счета совпадений), а результаты могут быть использованы только на основе



Рис. 17.4. Стандартный блок сдвигового регистра установки HLNCC и программируемый калькулятор HP-97. Это оборудование входит в комплект всех систем, указанных на рис. 17.1

градуировочной кривой при соответствующей скорости счета. Стандартный блок детектирования установки HLNCC и его блок электроники коммерчески доступны и используются как операторами установок, так и инспекторами.

Последние усовершенствования блоков детектора и электроники установки HLNCC описываются в следующем разделе.

17.2.3 Усовершенствованный высокоуровневый счетчик нейтронных совпадений HLNCC-II

К настоящему времени разработан и изготовлен усовершенствованный вариант установки HLNCC. Детектор по-прежнему содержит 18 штук ^3He -счетчиков, но в полиэтиленовом замедлителе цилиндрической формы. В электронике установки были использованы более быстродействующие усилители и улучшена конструкция корпуса детектора. Вертикальный размер зоны равной эффективности

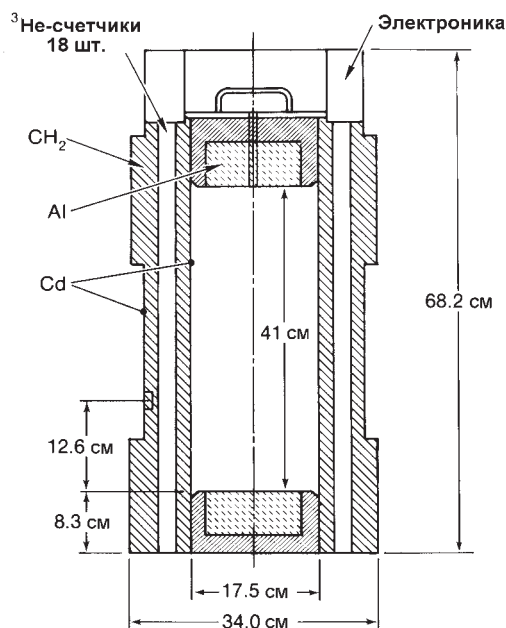


Рис. 17.5. Продольный разрез усовершенствованной установки HLNCC-II



Рис. 17.6. Общий вид установки HLNCC-II. Видны 6 индикаторных лампочек на соединительной коробке наверху блока детектирования и блок сдвигового регистра на столе

регистрации почти в три раза длиннее по сравнению с прототипом без увеличения размеров и массы. На рис. 17.5 показано сечение блока детектирования установки HLNCC-II, а на рис. 17.6 приведена фотография системы в сборе.

Первоначальная цель создания установки HLNCC-II состояла в том, чтобы получить ровную или плоскую характеристику чувствительности по высоте полости для образца при сохранении портативности установки. Это было достигнуто размещением колец из полиэтилена в виде прокладок сверху и снизу блока детектора для компенсации утечки нейтронов через торцы детектора. В дополнение к этим внешним кольцам внутренние полости торцевых пробок были сконструированы так, чтобы увеличить эффективность регистрации на концах детектора. Торцевые пробки изготовлены из полиэтилена с вкладышем из алюминия, которые дают лучшую чувствительность, чем пробки, изготовленные из какого-либо одного материала. Кроме того, полость для образца имеет кадмиевое покрытие для предотвращения возврата отраженных тепловых нейтронов назад в образец и устранения вынужденных делений. Поскольку кадмиевое покрытие не захватывает область торцевых пробок, полиэтилен этих пробок становится частью замедлителя для ^3He -счетчиков.

Характеристики чувствительности к полному потоку нейтронов и нейтронным совпадениям были измерены при перемещении источника ^{252}Cf вдоль оси измерительной полости для образца. Нормированные кривые чувствительности показаны на рис. 17.7, причем пунктирные кривые соответствуют первоначальной модели установки HLNCC. Улучшение чувствительности очевидно. В табл. 17.1 сравниваются некоторые ключевые параметры установки HLNCC и усовершенствованной установки HLNCC-II.

Таблица 17.1 – Сравнение параметров установок HLNCC и HLNCC-II

Параметр	HLNCC	HLNCC-II
Диаметр полости, см	17,5	17,5
Высота полости, см	35,0	41,0
Внешний диаметр, см	32–36	34,0
Масса установки, кг	48	43
³ He-счетчики:		
а) количество, шт.	18	18
б) активная длина, см	50,8	50,8
в) диаметр, см	2,5	2,5
г) давление газа, атм.	4	4
д) газовые добавки	Ar + CH ₄	Ar + CH ₄
Эффективность, %	12	17,5
Время жизни нейтронов, мкс	33	43
Кадмиевый экран	закрепленный	подвижный
Зона равной чувствительности, см		
счет совпадений (отклонение 2% от максимума)	11,0	30,5
общий счет (отклонение 1% от максимума)	10,5	33,5

Новый электронный блок регистрации, созданный параллельно с установкой HLNCC-II, базируется на гибридном зарядочувствительном предусилителе-дискриминаторе АМРТЕК А-111 [7]. На выходе предусилителя импульсы от нейтронов дискриминируются на уровне амплитуды шумов и гамма-излучения. Такой подход устраняет необходимость в дополнительных цепях формирования и позволяет достигать скоростей счета в 1300 кГц, что в четыре раза выше, чем у предыдущей системы (см. раздел 16.6.5).

Новый электронный блок может измерять образцы значительно большей массы, обычно ограничиваемой только требованиями ядерной безопасности. Миниатюрный предусилитель-дискриминатор размещается в непосредственной близости от ³He-счетчиков внутри герметичной коробки, что улучшает отношение сигнал/шум. Измеренная в лабораторных условиях стабильность полной скорости счета составила 0,002 % в течение двухнедельного периода. Эта наилучшая стабильность среди систем неразрушающего контроля.

Установка HLNCC-II с новой электроникой использовалась для анализа PuO₂, PuF₄, смешанного оксидного топлива и других типов плутониевых смесей. Пример отклика установки на PuO₂ как с поправкой на размножение, так и без нее приведен на рис. 17.8.

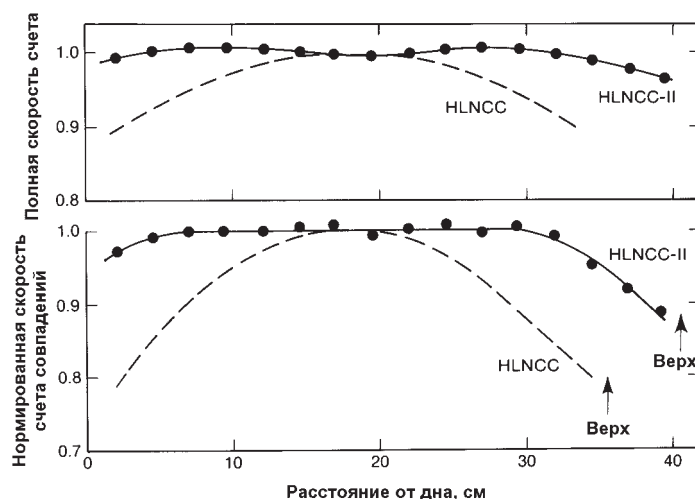


Рис. 17.7. Нормированные кривые изменения чувствительности вдоль вертикальной оси детектора для полной скорости счета и скорости счета нейтронных совпадений установки HLNCC (пунктирная линия) и установки HLNCC-II (сплошная линия). Видно трехкратное удлинение области равномерной чувствительности установки HLNCC-II

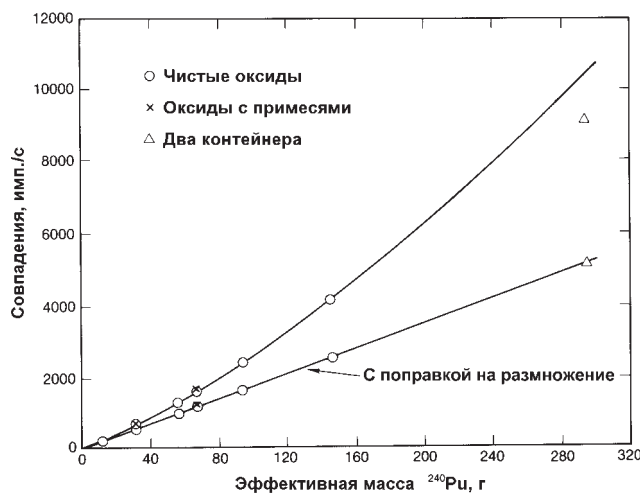


Рис. 17.8. Отклик нейтронных совпадений для установки HLNCC-II с новой, более быстрой электроникой для образцов PuO_2 различной массы (с поправкой на саморазмножение и без нее)

На этом рисунке наибольшая масса (около $300 \text{ г } ^{240}\text{Pu}_{\text{эфф}}$) соответствует двум контейнерам с PuO_2 , поставленным друг на друга. Воздушный зазор между двумя массами плутония уменьшает геометрическую связь по сравнению с одиночным контейнером с той же самой полной массой плутония. Такое уменьшение связи выражается в уменьшении эффекта размножения нейтронов и приводит к тому, что точка, соответствующая двум контейнерам, лежит ниже градуировочной кривой. Однако после введения поправки на размножение, как описано в разде-

ле 16.8, эта точка ложится на прямую линию, построенную по данным для одиночных контейнеров.

17.2.4 Специальные блоки детектирования для контроля элементов быстрых критических стенов

В большинстве случаев для потребителей желательна разработка блока детектирования в соответствии с областью его практического применения. Хотя такая специализация расширяет номенклатуру детекторов, она сокращает время анализа, затраты на градуировку, количество необходимых для этого стандартных образцов и уменьшает шанс возникновения ошибки при анализе. В этом разделе и разделах 17.2.5-17.2.8 дано описание некоторых из специализированных блоков детектирования, разработанных на основе установки HLNCC с использованием той же электроники.

В быстрых критических стендах (БКС) блочки металлического плутония обычно находятся в прямоугольных кассетах размером 5×5×40 см и желательно контролировать содержание плутония в блочках без извлечения их из лотка. Для этой цели был сконструирован каналный счетчик совпадений CCC (Channel Coincidence Counter) [8], показанный на рис. 17.9.

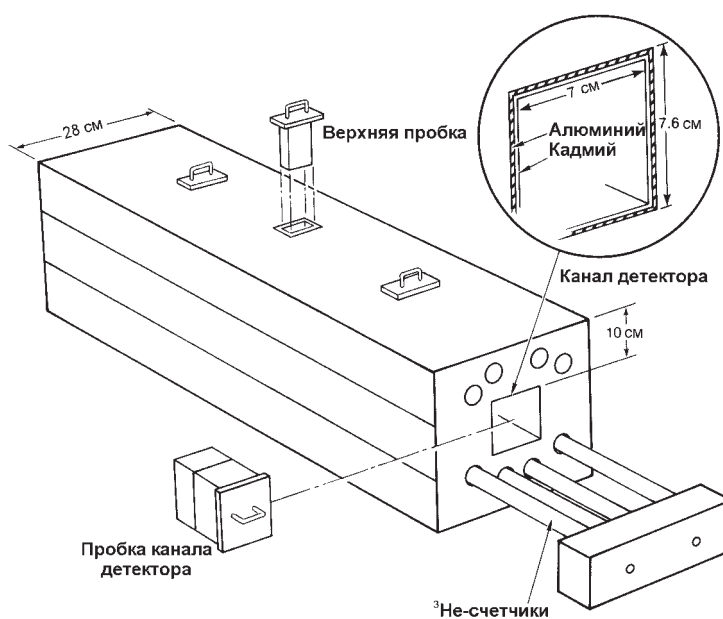


Рис. 17.9. Изометрическая проекция каналного счетчика нейтронных совпадений. Установка используется для анализа лотков с топливом для быстрых критических стенов и стержней со смешанным топливом

Принципиальной особенностью этой установки является наличие канала размером 7×7 см, который проходит насквозь по всей длине (97 см) детектора. Этот канал имеет достаточный размер для размещения топливных кассет и лотков стержней БКС, но вполне мал, чтобы обеспечить высокую и приемлемо однородную эффективность по нейтронным совпадениям. Система имеет три верхние

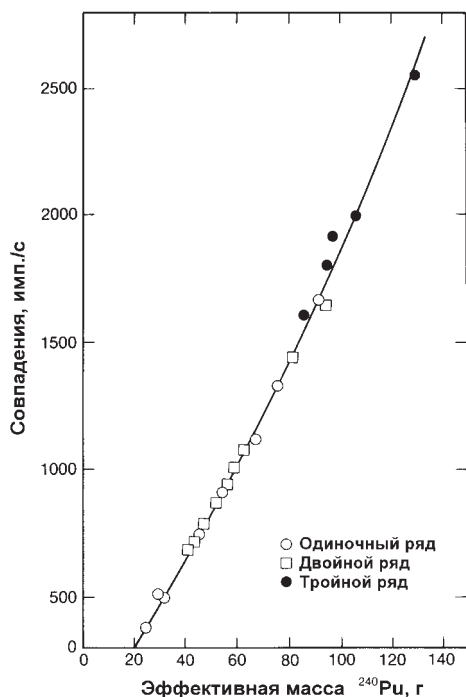


Рис. 17.10. Градуировочный график для одного, двух и трех рядов плутониевых топливных пластин в кассете для быстрого критического стенда

пробки, каждая из которых может быть вынута при необходимости измерений гамма-излучения исследуемого образца. Центральная верхняя пробка, кроме того, используется как держатель источника при градуировке детектора.

На рис. 17.10 приведена градуировочная кривая для кассет с пластинами плутония. Данные, использованные для построения этой кривой, были получены с пластинами для плутониевого реактора нулевой мощности ZPPR (Zero-Power Plutonium Reactor) уложенными в один, два и три ряда вместе с матрицей из железа, алюминия, углерода и обедненного урана. При увеличении массы плутония возрастает эффект размножения нейтронов, что приводит к дополнительному увеличению отклика установки. В частности, данные, полученные для трех рядов пластин плутония, показывают увеличение размножения по сравнению с одним или двумя рядами. Стандартная методика поправок на саморазмножение (см. раздел 16.8) может устранить эту разницу. Погрешность при измерении кассет БКС оказалась лучше 1 % при времени измерения 1000 с. Этот счетчик используется для обычных измерений на установке БКС [9].

Счетчик типа "Птичья клетка" был спроектирован для анализа таких же металлических блочков плутония, но было необходимо проводить измерения внутри "птичьей клетки", используемой для хранения и перемещения блочков. Блок детектирования содержит ^3He -счетчики, находящиеся внутри полиэтиленового замедлителя, и имеет прямоугольную форму с открывающейся внутренней полостью для размещения цилиндрического контейнера для хранения материала. Отклик нейтронных совпадений демонстрирует увеличение размножения нейтронов при возрастании загружаемой массы ядерного материала. При времени измерения 1000 с были получены точность и сходимость ~1 %. Этот счетчик используется для обычных измерений на установках БКС.

17.2.5 Специальные блоки детектирования для контроля топлива реакторов на быстрых нейтронах

Специальный счетчик нейтронных совпадений был сконструирован для контроля топливных стержней в лотках [10]. Этот счетчик для лотков, показанный на рис. 17.11, содержит плоскую сборку ^3He -счетчиков на полиэтиленовой плите. Через паз в блоке детектирования обеспечивается доступ к его рабочему объему для размещения в нем лотка из нержавеющей стали, используемого оператором установки для укладки топливных стержней партиями по 24 штуки. Лоток может быть загружен через переднюю часть счетчика и удален через его переднюю или заднюю часть, как желательнее оператору. В отличие от более предпочтительной цилиндрической и гексагональной геометрии этот счетчик для лотков имеет плоскую форму, поэтому для достижения однородной пространственной чувствительности необходимо индивидуально подбирать группы счетчиков. Область однородной чувствительности составляет ~55 см в длину и 30 см в ширину, что соответствует активной плутониевой зоне топливного стержня. При измерениях лоток должен быть приподнят на высоту около 25 мм.

Установка может быть использована при измерениях лотка со стержнями для реактора на быстрых нейтронах за 2-3 мин с чувствительностью гораздо выше, чем при измерении одного стержня. Основным преимуществом данной установки является то, что контроль полного лотка со стержнями возможен без его перезагрузки или перемещения отдельных стержней. Этот счетчик для лотков с топливными стержнями реактора на быстрых нейтронах в настоящее время используется на заводе по производству плутониевого топлива.

Сборки для реакторов на быстрых нейтронах содержат большое количество плутония (от 5 до 16 кг), и контроль этого материала имеет важное значение для целей обеспечения гарантий ядерных материалов. На рис. 17.12 приведена фото-



Рис. 17.11. Счетчик для контроля топливных стержней, используемый при проверке лотков со стержнями для реактора-размножителя на быстрых нейтронах. Блок сдвигового регистра и соединительная коробка с предусилителем находятся наверху детектора



Рис. 17.12. Цилиндрический счетчик нейтронных совпадений для контроля кассет топливных стержней реактора-размножителя на быстрых нейтронах

графия цилиндрического счетчика совпадений, используемого для измерения топливных сборок для быстрых реакторов-размножителей, блок детектирования которого содержит 12 штук ^3He -счетчиков, размещенных в полиэтиленовом кольце для замедления нейтронов. Активная длина детектора составляет 1,21 м, так что весь участок топливной сборки, содержащий плутоний, размещается внутри счетчика. Полная эффективность счетчика составляет ~7%. Первоначальная его конструкция обладала областью равномерной эффективности длиной около 60 см, которая была достаточна для прототиповборок быстрых реакторов-размножителей, имевших меньшие размеры.

Некоторые быстрые реакторы имеют плутониевую активную зону длиной 92 см и используют сборки с массой плутония до 15 кг. Такая загрузка (15 кг плутония) почти в три раза превосходит массу, которая может быть удовлетворительно измерена с помощью традиционного блока электроники, разработанного для счетчика HLNCC. Необходимость измерять сборки полностью с большими нагрузками привела к созданию универсального счетчика совпадений дляборок быстрых реакторов-размножителей UFBR (Universal Fast-Breeder-Reactor Counter) [11]. В этом счетчике впервые нашла практическое применение новая быстрая электронная схема регистрации АМРТЕК [7].

На рис. 17.13 показан блок детектирования счетчика UFBR с аналоговой секцией электроники, размещенной в верхней части цилиндрического детектора. Длина детектора достаточна для размещения внутри него активной плутониевой зоны сборки. Для получения постоянной чувствительности вдоль активной зоны сборки (92 см) каждый из 12 штук ^3He -счетчиков окружен слоем полиэтилена и



Рис. 17.13. Универсальный счетчик нейтронных совпадений UFBR для проверки кассет топливных стержней реактора-размножителя на быстрых нейтронах. В счетчике использована новая схема АМРТЕК

кадмием. Для увеличения эффективности и компенсации утечки нейтронов через торцы блока детектирования на концах детектора кадмий отсутствует. На рис. 17.14 показаны нормализованный полный отклик и отклик совпадений, измеренные вдоль оси детектора с помощью источника ^{252}Cf .

В блоке детектирования UFBR использованы ^3He -счетчики диаметром 2,54 см с активной длиной 122 см и давлением газа 4 атм. Эффективность системы равна 7,2 %, время жизни нейтронов составляет 21,6 мкс. Эти параметры позволяют получить сходимость измерений 0,5 % (1σ) за 1000 с для типичных сборок быстрых реакторов. Две из этих установок проходят испытания и доработку для дальнейшего использования при контроле сборок быстрых реакторов. Первоначальное тестирование и градуировка системы были проведены с использованием сборки испытательного реактора на быстрых нейтронах (Fast Flux Test Facility) в компании Washington Hanford Company в Ричланде, штат Вашингтон.

17.2.6 Счетчик совпадений для инвентарных измерений ISCC

Анализ инспекторами инвентарных образцов плутония значительно затруднен правилами транспортировки ядерных материалов. Для преодоления этих проблем и получения своевременных результатов, необходимы независимые измерения на местах, в том числе на заводах по переработке ядерного топлива и изготовлению плутония. Эта необходимость привела к разработке счетчика совпадений для инвентарных измерений ISCC (Inventory Sample Coincidence Counter) [12] для количественного контроля плутония в инвентарных образцах продук-

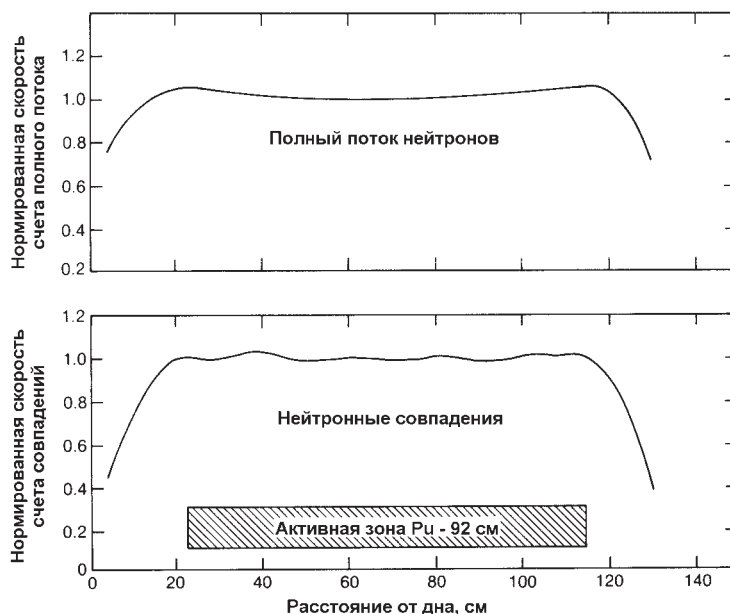


Рис. 17.14. Графики нормированной чувствительности к полному потоку нейтронов и нейтронным совпадениям вдоль оси счетчика UFBR

ции. Эта система портативна, и образцы могут анализироваться в ампулах, обычно используемых для передачи образцов в аналитическую лабораторию. Также могут быть проанализированы таблетки и порошки. Эта установка использует ту же самую электронику, что и стандартная установка HLNCC, но обладает повышенной эффективностью и рассчитана на меньший диапазон масс плутония (от 0,1 до 500 г).

На рис. 17.15 показан блок детектирования установки ISCC. Полость детектора приспособлена для образцов, которые помещаются в держателе диаметром 5 и высотой 14 см. Диаметр полости для образца можно увеличить до 8,8 см, вынув цилиндрический полиэтиленовый вкладыш. Замедлитель из полиэтилена высокой плотности и расположение нейтронных счетчиков были выбраны таким образом, чтобы сделать установку относительно нечувствительной к водородосодержащим материалам, входящим в матрицу образца. Эффективность установки ISCC составляет 35 %, что почти в 3 раза выше, чем у установки HLNCC, и поэтому требуемое время измерения небольших проб составляет около одной девятой времени, требуемого для установки HLNCC.

Так как установка ISCC принципиально предназначена для работы с маленькими образцами, эффекты ослабления и размножения нейтронов невелики и градуировочная характеристика очень близка к прямой, описываемой формулой $m = aR$, где m — эффективная масса изотопа ^{240}Pu , R — скорость счета нейтронных совпадений, a — градуировочная постоянная. Для образцов в виде растворов, таких как нитрат плутония, наблюдается некоторое количество актов деления за счет саморазмножения. В этих случаях градуировочная кривая аппроксимируется степенной функцией $m = aR^b$, где коэффициент b близок к единице.

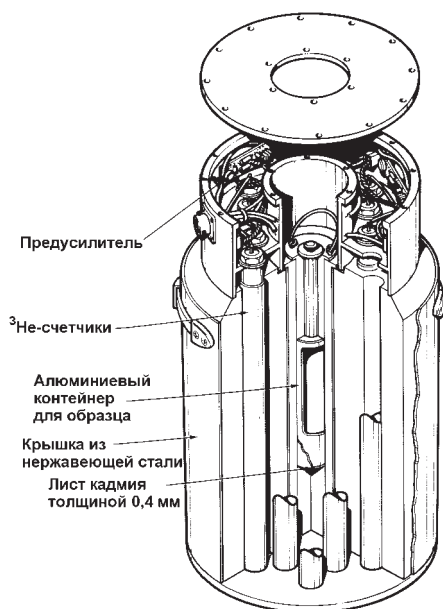


Рис. 17.15. Изометрическая проекция счетчика нейтронных совпадений ISCC для инвентаризационных измерений

Установка ISCC может измерять отдельные таблетки смешанного топлива или группы из нескольких таких таблеток. На рис. 17.16 показана статистическая погрешность 1σ как функция времени измерения. Для образца, содержащего четыре типовые таблетки обычного смешанного топлива или топлива для быстрого реактора, величина погрешности составляет $\sim 1\%$ за время измерения 200 с. Для построения градуировочной кривой был использован набор стандартных образ-

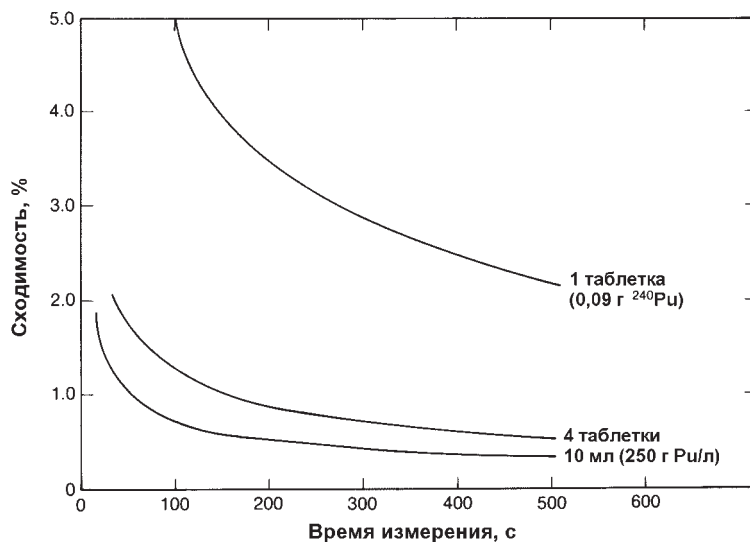


Рис. 17.16. Зависимость сходимости результатов анализа на установке ISCC от времени измерения для типичных образцов смешанного топлива

цов из таблеток смешанного топлива. На рис. 17.17 показана функция отклика для отдельных таблеток. Содержание плутония в этих таблетках (отношение $\text{Pu}/[\text{PuO}_2 + \text{UO}_2]$) лежит в диапазоне от 1,4 до 21,6 %. Прямая линия дает великолепное приближение к результатам. Ввиду небольшого количества делящегося материала в этих образцах форма или плотность практически не влияют на результаты измерений. Данные для образцов из порошка PuO_2 также хорошо ложатся на ту же самую градуировочную кривую, как и для таблеток.

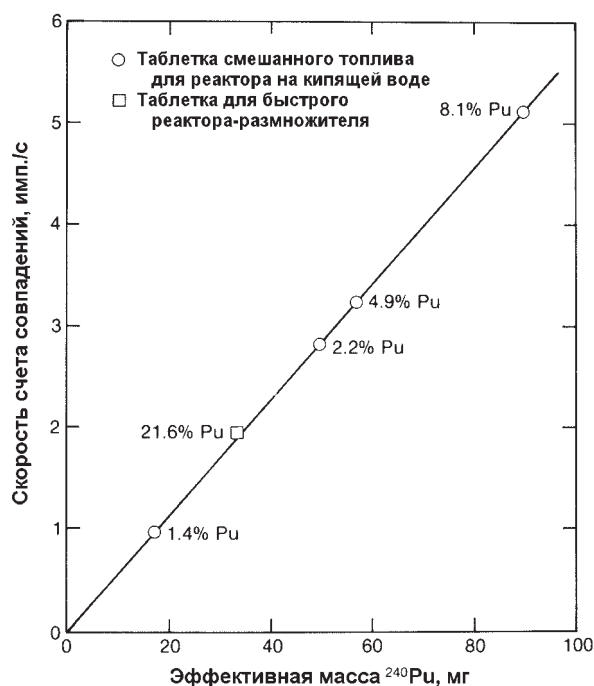


Рис. 17.17. Отклик совпадений установки ISCC для таблеток смешанного топлива

Для градуировки установки ISCC был изготовлен набор стандартных образцов раствора нитрата плутония. Объем раствора составлял от 3 до 9 мл и концентрация изменялась от 150 до 300 г/л. Для данного диапазона результаты анализа не зависят от объема, но растворы с большей массой плутония дают несколько больший (~5 %) отклик на грамм из-за саморазмножения нейтронов.

Ввиду того, что градуировочные кривые почти линейны, снижаются требования к физическим стандартам. Для привязки электроники к предварительно измеренной градуировочной кривой может быть использован градуировочный источник на основе ^{252}Cf . Другой подход состоит в использовании стандартных образцов предприятия. Например, могут быть взяты две топливные таблетки из материала, предъявленного для инвентаризации, и тщательно измерены на установке ISCC. Затем одна из них подвергается разрушающему химическому анализу, а другая, запаянная в оболочку, используется в качестве долговременного стандартного образца. Эта процедура по сути дела то же самое, что и использование ^{252}Cf градуировочного источника, но источник ^{252}Cf требует меньше времени для проведения обычных градуировочных измерений, с ним легко работать вручную и транспортировать ввиду его низкой активности (~4 мкКи), что в 10^6 раз меньше, чем активность плутониевого стандартного образца.

17.2.7 Установки для контроля растворов нитрата плутония

В принципе, спонтанное деление четных изотопов может быть зарегистрировано как в растворах, так и в металлах или оксидах. Равномерность плотности, распределения и матрицы материала раствора фактически могут дать очень точные и воспроизводимые результаты анализа. На практике, однако, замедление и поглощение нейтронов в растворе приводят к смещению результатов измерений. В этом разделе описаны две установки нейтронных совпадений, разработанные специально для анализа образцов с объемом от 1 л и более, в которых могут наблюдаться такие эффекты.

Счетчик нейтронных совпадений для растворов SNCC (Solution Neutron Coincidence Counter) [13] был разработан для контроля протекающих растворов, которые либо слишком объемны, либо содержат слишком много продуктов деления, чтобы использовать обычный анализ по гамма-излучению. На рис. 17.18 показана установка SNCC с внутренней измерительной камерой объемом 1 л, а также внешнее и внутреннее расположение счетчиков. ^3He -счетчики (26 штук) плотно располагаются двумя кольцами вокруг измерительной камеры для достижения высокой эффективности регистрации. Активная длина счетчика, равная 50 см, ограничивает чувствительный объем для измерения емкости с раствором. Используется частичное экранирование детектора кадмием для получения почти плоской кривой эффективности регистрации вдоль оси счетчика. Для обеспече-

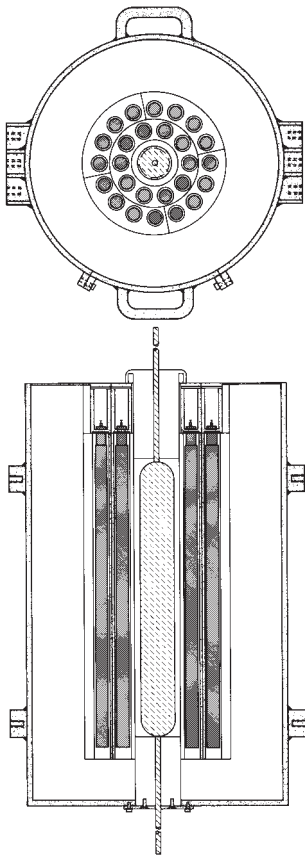


Рис. 17.18. Поперечный и продольный разрезы установки нейтронных совпадений SNCC для растворов. Установка имеет внешнее и внутреннее кольца ^3He -счетчиков и измерительную камеру объемом 1 л

ния оптимальной чувствительности к плутониевым растворам используется слой дополнительного полиэтилена толщиной только 1,1 см между раствором и первым кольцом ^3He -счетчиков, так как сам раствор может быть представлен как замедлитель толщиной $\sim 2,6$ см. При данной толщине полная эффективность прибора составляет 33 %, а время жизни нейтронов равно 38 мкс. Установка SNCC имеет диаметр 48 и длину 82 см, включая полиэтиленовую защиту толщиной 10 см и стальной корпус толщиной 1 см.

Счетчик SNCC был установлен на верху экспериментального вытяжного бокса установки по производству плутония в Лос-Аламосе. Емкости с раствором поступали в бокс с помощью заводского конвейера. Затем раствор подавался внутрь детектора с помощью пневмопочты, выполненной в виде двойных труб из нержавеющей стали. Нейтронный счетчик мог устанавливаться и сниматься без демонтажа трубопровода, перекачивающего раствор. Таким образом, счетчик SNCC мог быть установлен вокруг существующей трубы без врезки в магистраль.

С помощью установки SNCC анализировались растворы нитрата плутония в диапазоне концентраций от 2 до 100 г/л (от 0,2 до 12 г ^{240}Pu /л). Каждый раствор измерялся повторно для контроля стабильности и воспроизводимости результатов измерений. Результаты этих измерений сравнивались с результатами, полученными при химическом анализе на основе кулонометрического титрования или масс-спектрометрического анализа на основе изотопного разбавления. Данные, приведенные на рис. 17.19, показывают отклонение вверх относительно прямой, что объясняется эффектом саморазмножения в растворе. После введения поправки на этот эффект и подгонки к прямой линии, результаты неразрушающего анализа имели разброс 1,6 % относительно результатов, полученных с помощью химического анализа.

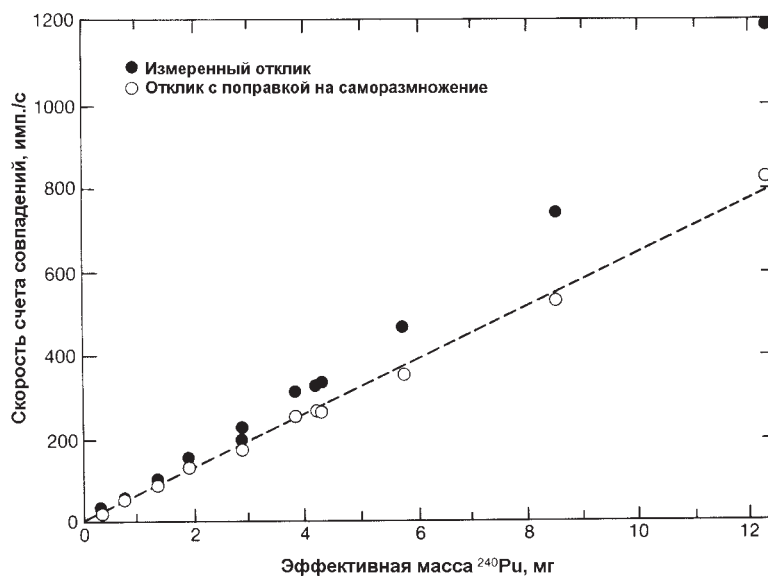


Рис. 17.19. Результаты анализа раствора нитрата плутония на установке SNCC. Зависимость скорости счета нейтронных совпадений от ^{240}Pu с поправкой на саморазмножение и без нее

Счетчик для баллонов с нитратом плутония PLBC (Plutonium Nitrate Bottle Counter) [14] был сконструирован для анализа растворов плутония в больших емкостях (10 см в диаметре и 105 см высотой). Детектор этой установки по размерам и форме подобен детектору установки для контроля сборок быстрых реакторов, который показан на рис. 17.12. Установка предназначена для использования на заводах по переработке топлива или конверсии нитратов в оксиды, где используются такие большие емкости. Первоначальные результаты анализа трех таких цилиндров приведены на рис. 17.20. Средний образец (концентрация около 100 г/л) имеет большее умножение, чем образец с наибольшей концентрацией (около 200 г/л). При концентрации свыше 100 г/л уменьшение содержания водорода приводит к снижению эффекта размножения.

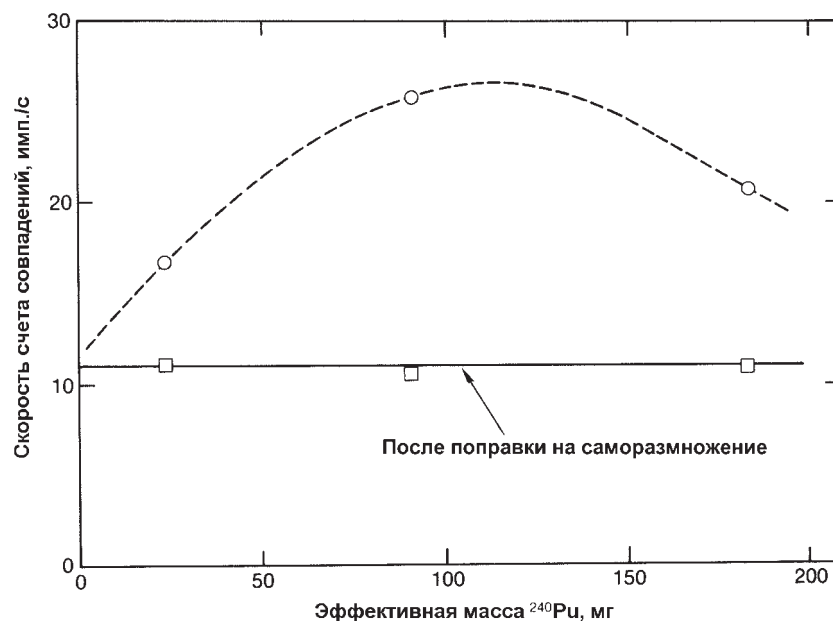


Рис. 17.20. Результаты анализа больших емкостей с раствором нитрата плутония на установке PLBC. Зависимость скорости счета совпадений, нормированной на полную массу материала, от массы ^{240}Pu с поправкой на саморазмножение и без нее

17.2.8 Двухдиапазонный счетчик совпадений DRCC

В многочисленных областях применения установок нейтронных совпадений желательно охватить диапазон масс PuO_2 от долей грамма до нескольких килограмм. Для достижения такого широкого диапазона была разработана и изготовлена установка типа DRCC [15]. Возможность измерения в двух диапазонах масс была достигнута путем использования двух выдвижных кадмиевых экранов вокруг ^3He -счетчиков. Эти экраны вставляются в детектор для проведения измерений с низкой эффективностью при малом времени жизни нейтронов и вынимаются из него для измерений с высокой эффективностью при большом времени жизни нейтронов в детекторе.

Геометрия такого детектора представлена на рис. 17.21. Передвижные кадмиевые экраны располагаются с двух сторон среднего полиэтиленового цилиндра

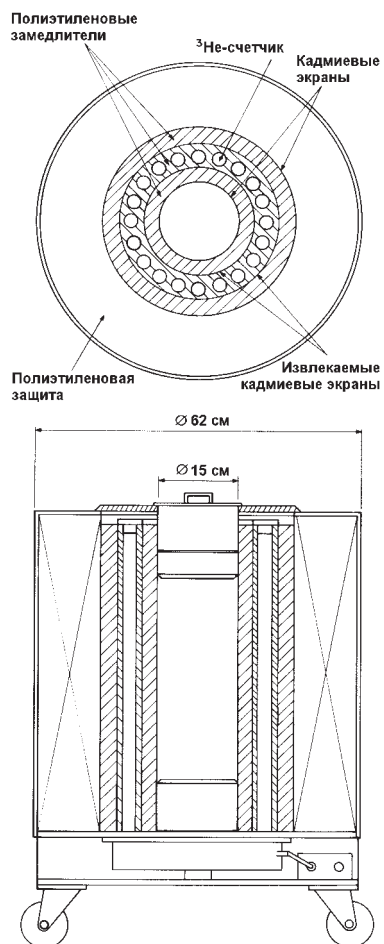


Рис. 17.21. Двухдиапазонная установка нейтронных совпадений DRCC для анализа плутониевых образцов в области масс от 1 до 400 г

(замедлителя). Детектор содержит 20 штук ^3He -счетчиков диаметром 2,54 см с давлением 4 атм. Внутренний и внешний полиэтиленовые цилиндры (замедлители) имеют по 3 см толщины каждый. Кадмиевый экран (толщиной 1,0 мм) внутри колодца детектора предназначен для поглощения тепловых нейтронов, возвращающихся назад из замедлителя в рабочую полость. Это сделано для снижения размножения нейтронов при загрузке в детектор большой массы ядерного материала. Внешний кадмиевый экран повышает эффективность наружной полиэтиленовой защиты толщиной 10 см.

Установка может работать в двух режимах:

1. измерение малых количеств плутония с двумя выдвинутыми кадмиевыми экранами для получения максимальной эффективности;
2. измерение больших масс, когда все экраны установлены на место, что приводит к малому времени жизни нейтронов и, следовательно, к использованию коротких ворот в электронном блоке совпадений.

В первом режиме эффективность регистрации одиночных нейтронов равна 22 % и время жизни составляет 52 мкс. Для второго режима эффективность снижается до 7 %, а время жизни — до 16 мкс.

Производственные испытания этой установки были проведены на разделительной площадке завода в Саванна-Ривер [16]. С помощью счетчика анализировались различные образцы поступающего металлического плутония и отправляемых оксидов. В течение испытательного периода длительностью 18 месяцев двухдиапазонный счетчик показал хорошую надежность и стабильность. Для больших образцов из металла и оксидов погрешность анализа (1σ) с учетом статистики отсчетов и воспроизводимости была меньше 1 %. Для чистых металлических образцов, с поправкой на саморазмножение, погрешность анализа составила 2 % (1σ). Для всех типов оксидов использовалась погрешность анализа двуокиси плутония 3 % (1σ) по индивидуальным градуировочным кривым, без поправки на саморазмножение. Для металла, содержащего примеси, погрешность анализа составила порядка 10 % (1σ). Для ограниченного набора образцов скрапа погрешность анализа колебалась от 5 до 15 % (1σ).

Двухдиапазонный счетчик, изготовленный Национальной ядерной корпорацией, используется на заводе в Хэнфорде (Rockwell Hanford Facility), штата Вашингтон для быстрого контроля упаковок, содержащих плутоний, перед их отправкой и после получения. В работе [17] сообщается об измерении около тысячи разных упаковок. Средний разброс (на один образец) между паспортными данными и результатами анализа (см. рис. 17.22) для металлического плутония составил 4 % (1σ). Для оксида плутония эта величина составила 5 % (1σ), для брусков из полистирола со смесью урана и плутония — 3 % (1σ), для скрапа топливных стержней — 27 % (1σ) и для смешанных отходов — 70 % (1σ). Рассматривая в целом каждую группу материалов, можно сказать, что расхождение между паспортным значением массы и ее оценкой составляет около 1 % для металла, оксида, брусков из полистирола и 10 % — для другого скрапа.

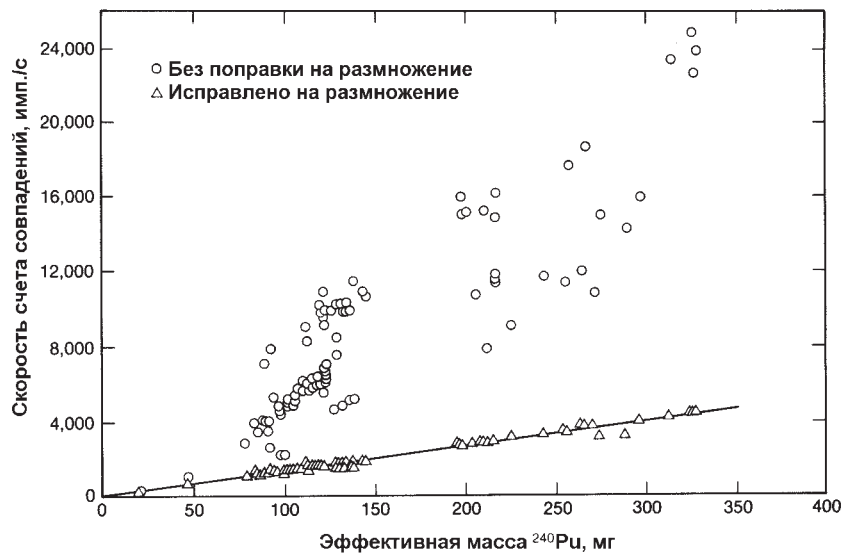


Рис. 17.22. Результаты анализа металлического плутония двухдиапазонной установкой нейтронных совпадений DRCC на заводе в Хэнфорде [17]. Исправленные на размножение результаты имеют разброс около 4 % (1σ) по сравнению с результатами калориметрии и масс-спектрометрии

Производственный опыт использования двухдиапазонного счетчика показал, что метод нейтронных совпадений обеспечивает точность анализа от 2 до 4 % для хорошо охарактеризованных плутониевых образцов в виде металла и оксида. Для гетерогенных оксидов и металлов с примесями метод нейтронных совпадений не имеет явного преимущества по сравнению с методом регистрации полного потока нейтронов. Это объясняется тем, что поправка на саморазмножение применима только для чистых металлических и хорошо охарактеризованных оксидных образцов, когда геометрические эффекты превосходят эффекты размножения, вызванные нейтронами (α, n)-реакций. В других больших размножающих образцах регистрация полного потока нейтронов часто обеспечивает более точный анализ ввиду его меньшей чувствительности к размножению. С другой стороны, метод нейтронных совпадений более точен для скрапа с низким размножением, когда бывает необходимо отсекал нейтроны сильных (α, n)-реакций или высокого фона в помещении. В общем случае, для всего многообразия материалов необходимо использовать как метод совпадений, так и метод регистрации полного потока нейтронов.

17.3 АКТИВНЫЕ СИСТЕМЫ ДЛЯ РЕГИСТРАЦИИ НЕЙТРОННЫХ СОВПАДЕНИЙ

Пассивная установка совпадений HLNCC и многие специализированные блоки детектирования, созданные на ее основе, применимы для пассивного анализа плутония. Однако это оборудование не может быть использовано для пассивного анализа большинства урановых образцов из-за предельно низкого уровня выхода нейтронов спонтанного деления. Для анализа урана были разработаны активные счетчики нейтронных совпадений, использующие те же самые портативные или транспортабельные блоки электроники, а также небольшие AmLi-источники нейтронов для облучения ^{235}U или ^{233}U . Активные счетчики нейтронных совпадений могут также работать в пассивном режиме при извлеченном источнике подсветки. Описание этих счетчиков представлено в данной главе, поскольку они схожи с пассивными счетчиками. Рассмотрены следующие приборы:

1. активный колодезный счетчик нейтронных совпадений AWCC (Active Well Coincidence Counter);
2. воротниковый счетчик нейтронных совпадений для урана UNCC (Uranium Neutron Coincidence Counter);
3. пассивный воротниковый счетчик нейтронных совпадений для плутония PNCC (Passive Neutron Coincidence Counter);
4. монитор для входного контроля баллонов с UF_6 RAM (Receipts Assay Monitor).

17.3.1 Активный колодезный счетчик нейтронных совпадений AWCC

На рис. 17.23 показана конструкция установки AWCC [18]. Она очень похожа на пассивную установку, за исключением наличия двух небольших ($\sim 5 \times 10^4$ нейтр./с) AmLi-источников, размещенных сверху и снизу измерительной полости. Два кольца ^3He -счетчиков дают высокую эффективность регистрации

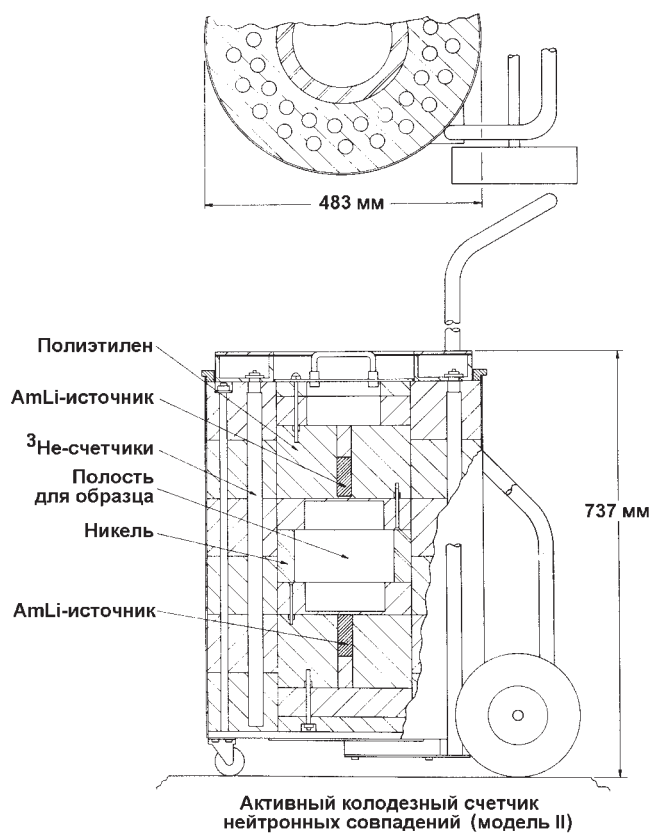


Рис. 17.23. Чертеж активного колодезного счетчика нейтронных совпадений AWCC. Показано расположение ^3He -счетчиков, замедлителя и полости для образца, экранированной кадмием

нейтронных совпадений, вызванных вынужденным делением. Сами AmLi-источники не производят совпадающих нейтронов, но зато образуют много случайных совпадений, что является главным источником погрешностей при анализе (см. раздел 16.7.2). Полиэтиленовый замедлитель и кадмиевые экраны сконструированы таким образом, чтобы обеспечить максимальную эффективность регистрации вынужденных делений и минимальную эффективность регистрации нейтронов (α, n)-реакции из AmLi-источников подсветки.

Никелевый отражатель в измерительной полости детектора обеспечивает более проникающее нейтронное облучение и слегка улучшенную статистическую точность, по сравнению с той, которая могла бы быть достигнута без него. При наличии этого отражателя максимальный диаметр образца составляет 17 см. Для образцов большого диаметра никелевый отражатель может быть удален, при этом измерительная полость имеет диаметр 22 см. Концевые пробки имеют полиэтиленовые диски, выполняющие роль прокладок, причем эти диски могут быть удалены для увеличения высоты рабочей полости. Убирая диски с верхней и нижней пробок, можно получить высоту рабочей полости, равную 35 см.

Кадмиевый экран с внешней стороны детектора уменьшает влияние фона низкоэнергетических нейтронов в помещении. Кадмиевый экран внутри колодца детектора поглощает тепловые нейтроны из нейтронного потока подсветки и улучшает экранирование между ^3He -счетчиками и AmLi-источником. При установленном на место кадмиевом экране режим работы AWCC называется "быст-

рым". В этом случае нейтронный спектр имеет относительно высокую энергию и установка хорошо подходит для анализа больших количеств ^{235}U . Конфигурация установки при удаленных кадмиевых экранах называется "тепловой". В этом случае спектр облучающих нейтронов имеет сравнительно низкую энергию, а чувствительность установки значительно повышается, но при этом проникающая способность таких нейтронов крайне низка. В данной конфигурации установка применяется для анализа небольших или низкообогащенных урановых образцов.

В табл. 17.2 представлены эксплуатационные характеристики установки АWCC как в быстром, так и в тепловом режимах работы. Абсолютная точность анализа практически не зависит от величин анализируемых масс (см. раздел 16.7.2). В общем, установка АWCC лучше всего подходит для анализа массивных образцов из высокообогащенного урана и ее не следует использовать для образцов с низким обогащением по ^{235}U , исключая анализ в тепловом режиме образцов с хорошо известными свойствами. Установка АWCC может также быть использована в пассивном режиме для контроля плутония, при этом Am-Li-источники должны быть удалены.

Таблица 17.2 – Основные характеристики установки АWCC

Характеристика	Тепловой режим	Быстрый режим
Эффективность регистрации, %		28
Время жизни нейтронов, мкс		50
Диапазон масс ^{235}U , г	0 – 100	100 – 20000
Чувствительность к низкообогащенному U_3O_8 , имп./с·г ^{235}U	11	0,18
Чувствительность к высокообогащенному металлу, имп./с·г ^{235}U	-	0,08
Абсолютная погрешность для больших образцов при времени измерения 1000 с, г ^{235}U	0,3	18
Порог чувствительности * для небольших образцов при времени измерения 1000 с, г ^{235}U	1	24

* Определяется как чистый сигнал совпадений, равный 3σ от скорости счета внешнего фона при времени измерения 1000 с.

По сравнению с обычной установкой, регистрирующей быстрые нейтронные совпадения, например, типа "Рэндом драйвер" [1], счетчик АWCC более портативен, легок, стабилен и менее подвержен влиянию внешнего гамма-фона. Последняя особенность делает его применимым для контроля материалов уран-ториевого топливного цикла, которые обладают очень высоким уровнем гамма-излучения из-за продуктов распада изотопа ^{232}U . Установка "Рэндом драйвер" имеет преимущество в том, что нейтроны подсветки в ней имеют большую среднюю энергию и потому обладают большей проникающей способностью [19]. Эта уста-

новка имеет в тысячу раз меньшую ширину ворот совпадений, делая возможным использование источника подсветки с большей интенсивностью для улучшения чувствительности.

Установка AWCC обеспечивает решение нескольких измерительных задач, представляющих интерес для инспекторов. Список измеряемых материалов включает:

1. высокообогащенный уран (93 % ^{235}U) в металлических блоках весом от 1 до 4 кг, который является исходным материалом для производства топлива;
2. контейнеры с уран-алюминиевыми отходами производства топливных элементов;
3. контейнеры с порошком оксида урана;
4. смесь оксида урана и графита;
5. уран-алюминиевые слитки и топливные стержни;
6. топливные элементы для материаловедческих реакторов.

Типичные градуировочные кривые для случаев 1, 3 и 4 приведены на рис. 17.24 и 17.25. На всех кривых заметны эффекты самопоглощения нейтронов в уране, а противоположный эффект размножения нейтронов в металле виден на рис. 17.24.

Недавние производственные испытания установки с топливными элементами материаловедческого реактора [20] показали, что можно получить сходимость результатов анализа на уровне ~1 % при времени измерения 400 с. Преимущество установки AWCC перед традиционной методикой, основанной на регистрации гамма-излучения этих материалов для анализа топливных элементов материаловедческого реактора, состоит в том, что эта установка не имеет проблем, связанных с геометрией измерений и низким содержанием ^{235}U . Для контроля анализа топливных элементов и пластин для материаловедческого реактора установка AWCC видоизменяется, как показано на рис. 17.26 [21]. Два AmLi-источника устанавливаются внутри полиэтиленового вкладыша, в который помещаются топливные элементы. На рис. 17.27 показана градуировочная кривая для типовых пластин и элементов материаловедческого реактора.

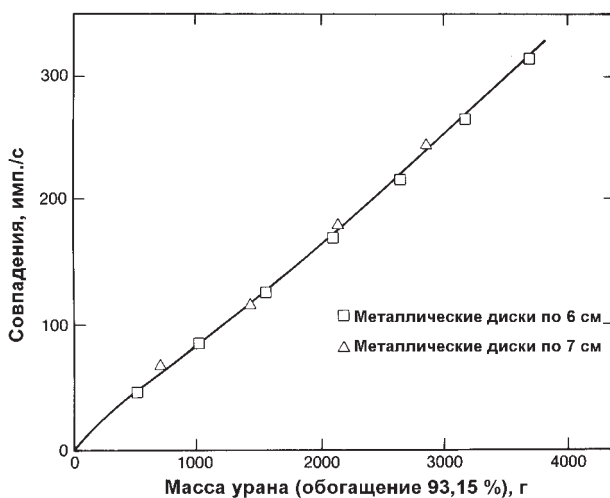


Рис. 17.24. Зависимость чувствительности установки AWCC от массы урана. Образцы набраны в виде стопки металлических дисков по 6 и 7 см

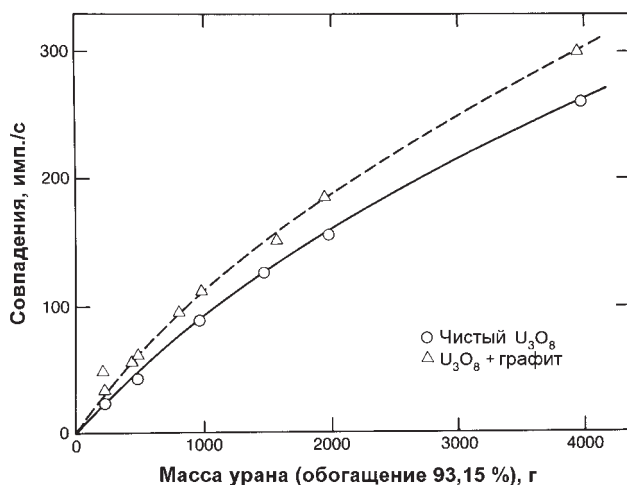


Рис. 17.25. Зависимость чувствительности установки AWCC от массы порошка оксида высокообогащенного урана и его смеси с графитом [19]

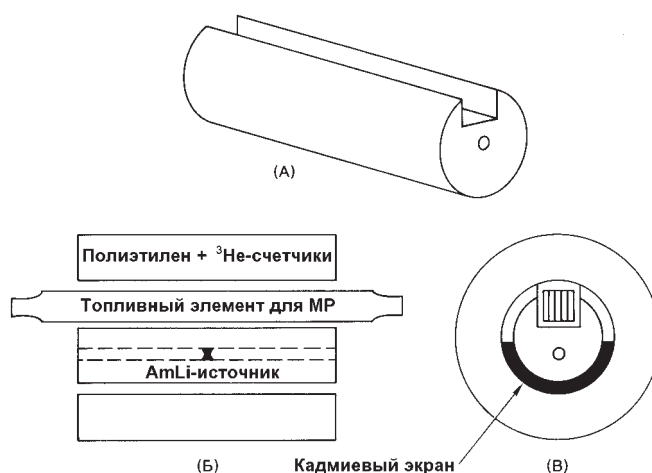


Рис. 17.26. Горизонтальное расположение установки AWCC с полиэтиленовым вкладышем, используемым для анализа топливных пластин и элементов материаловедческих реакторов (МР)

17.3.2 Воротниковый счетчик нейтронных совпадений для урана UNCC

Для целей ядерных гарантий большой интерес представляет измерение топливных сборок целиком, так как они являются выходным продуктом завода и входным для реактора. Обогащенный уран часто перемещается с одной установки или из страны на другую установку или в страну виде топливных сборок. Активный метод нейтронной подсветки [22] разрабатывался для измерения содержания ^{235}U в свежих топливных сборках. Метод использует AmLi-нейтронный источник для возбуждения реакции деления в сборке и регистрацию совпадений нейтронов, полученных в результате этой реакции. Регистрация совпадений устраняет нежелательные акты регистрации случайных нейтронов от самого AmLi-источника подсветки, а также влияние внешнего фона. Когда источник подсветки

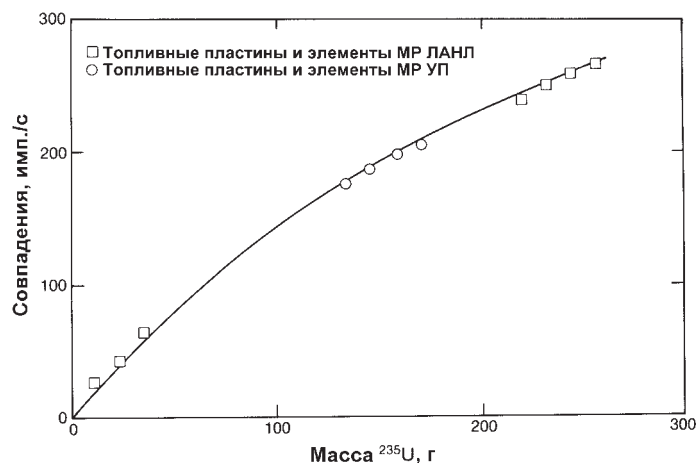


Рис. 17.27. Градуировочный график установки AWCC для топливных пластин и элементов материаловедческих реакторов (МР) Лос-Аламосской национальной лаборатории (ЛАНЛ) и Университета штата Пенсильвания (УП)

отсутствует, скорость счета пассивных нейтронных совпадений дает возможность измерять ^{238}U по реакции спонтанного деления. При наличии внешнего источника увеличение скорости счета совпадений дает возможность измерять ^{235}U . Воротниковый счетчик UNCC может быть применен для определения содержания делящихся материалов в сборках реактора на кипящей воде, реактора с водой под давлением и других типов топливныхборок для инвентарного учета ядерных материалов, контроля ядерной безопасности и целей ядерных гарантий.

Активные нейтронные системы, использующие подсветку тепловыми нейтронами, такие, как установка UNCC, имеют недостаток, связанный с самоэкранировкой, что ограничивает их чувствительность к материалу, находящемуся внутри объема сборки. Но современная установка UNCC компенсирует это ограничение эффектом размножения на быстрых нейтронах, который выше в центральной области сборки. Эффект размножения проявляется в увеличении скорости счета совпадений из-за увеличения эффективного числа связанных во времени нейтронов, испускаемых образцом, когда происходит вынужденное деление ядерных материалов. Фактически система работает как измеритель реактивности для топливныхборок. Удаление делящегося материала из сборки понижает нейтронную реактивность и, как следствие, число совпадений.

Установка UNCC состоит из трех блоков ^3He -счетчиков и AmLi-источника нейтронов, помещенных в корпус из полиэтилена высокой плотности без кадмиевого экрана. 18 штук ^3He -счетчиков имеют диаметр 2,54 см и активную длину 33 см. Корпус из полиэтилена выполняет три основные функции:

- является несущей конструкцией;
- замедляет нейтроны источника подсветки;
- замедляет нейтроны, родившиеся в результате вынужденного деления, для их регистрации ^3He -счетчиками.

Для инспекторских целей желательно, чтобы система была портативной. Вес системы ~30 кг.

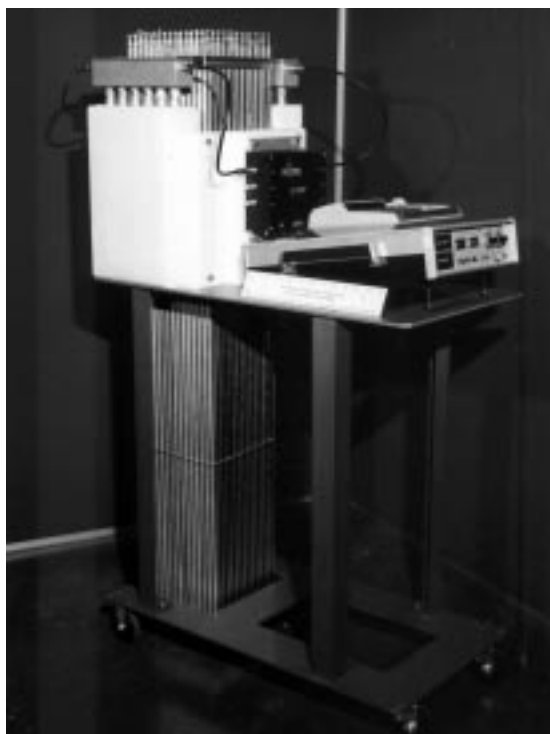


Рис. 17.28. Воротниковый счетчик нейтронных совпадений UNCC для урана на базе стандартного блока сдвигового регистра. Установка находится в положении для измерения макетов топливных сборок реактора с водой под давлением

Система в сборе, показанная на рис. 17.28, состоит из блока детектирования, электронного оборудования, микрокалькулятора HP-97 и несущей тележки, на которой при практическом применении система подкатывается к сборке. Задняя часть блока детектирования выполнена в виде дверцы, позволяющей охватить детектором измеряемую сборку.

Испытания и оценка установки UNCC были выполнены на заводе по производству топлива как для реакторов с водой под давлением [23], так и реакторов на кипящей воде [24]. С помощью активного режима с внешней подсветкой измерялось содержание ^{235}U , а пассивный режим использовался для определения содержания ^{238}U . Установка UNCC измеряет содержание ^{235}U или ^{238}U на единицу длины, которое пропорционально обогащению для данного типа сборки. Длина измеряемой зоны образца составляет ~ 400 мм, симметрично относительно центральной плоскости детектора.

Была выполнена серия измерений [23] с использованием полноразмерных (17×17 стержней) топливных сборок для реакторов с водой под давлением [23] с обогащением в диапазоне от 1,8 до 3,4 % по ^{235}U . Подсветка тепловыми нейтронами была доведена до уровня насыщения для всехборок, однако отклик измерительной установки продолжал увеличиваться как функция обогащения, потому что увеличивалось размножение на быстрых нейтронах. Подобные измерения были выполнены для топлива реакторов на кипящей воде. Градуировочная кривая на рис. 17.29 соответствует сборке 8×8 стержней для реактора на кипящей воде.

В итоге статистическая погрешность для измерения длительностью 1000 с изменялась от 0,6 до 0,9 % (1σ) в зависимости от типа сборки. Для более длительного времени регистрации, состоящего из нескольких циклов измерений, точ-

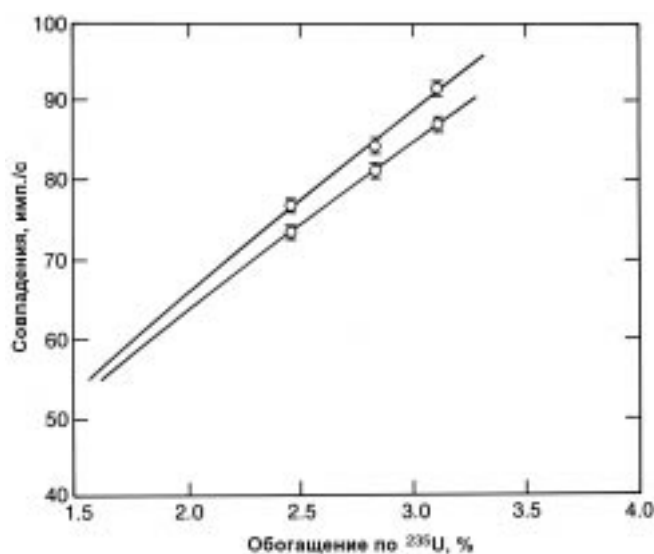


Рис. 17.29. Градуировочные графики установки UNCC для топливных сборок реактора на кипящей воде (8×8 стержней) с различным содержанием добавки гадолиния

ность для фиксированной геометрии составила около 0,1 %. Интенсивность приборного отклика для топлива реакторов на легкой воде не входила в насыщение и продолжала возрастать с ростом обогащения в обычном для топлива диапазоне. Относительно небольшое изменение загрузки, обычно не превышающее 1,9 %, могло быть зарегистрировано за время измерения 1000 с. Увеличение времени измерения может в дальнейшем уменьшить статистическую погрешность. Установка UNCC недавно поступила в опытную эксплуатацию для инспекторских целей.

17.3.3 Пассивный воротниковый счетчик нейтронных совпадений PNCC

Описанная выше установка UNCC была модифицирована для контроля смешанного оксидного топлива для сборок быстрых реакторов или реакторов на легкой воде [25]. Сборки со смешанным топливом имеют мощный внутренний источник нейтронов в результате спонтанного деления ^{240}Pu и (α, n) -реакции, так что нет необходимости использовать внешний AmLi-источник подсветки для возбуждения делений. Пассивный воротниковый счетчик нейтронных совпадений PNCC (рис. 17.30) подобен установке UNCC за исключением того, что стенка, содержащая AmLi-источник, заменена на четвертый блок детекторов, и между внутренней стенкой рабочей полости и сборкой установлены выдвижные кадмиевые экраны. Установка PNCC имеет те же основные размеры и характеристики, что и стандартная установка UNCC, для взаимозаменяемости их составных частей.

В пассивном режиме работы установки нейтроны, образованные в результате спонтанного деления, измеряются с помощью обычной методики нейтронных совпадений для определения эффективной массы ^{240}Pu . В активном режиме пассивные нейтроны отражаются назад в сборку, вызывая реакции деления в ядерном материале топлива. Для определения доли отраженных нейтронов изменяется альbedo пограничного слоя, т.е. замедлителя, окружающего сборку, посредством введения и удаления кадмиевого экрана.

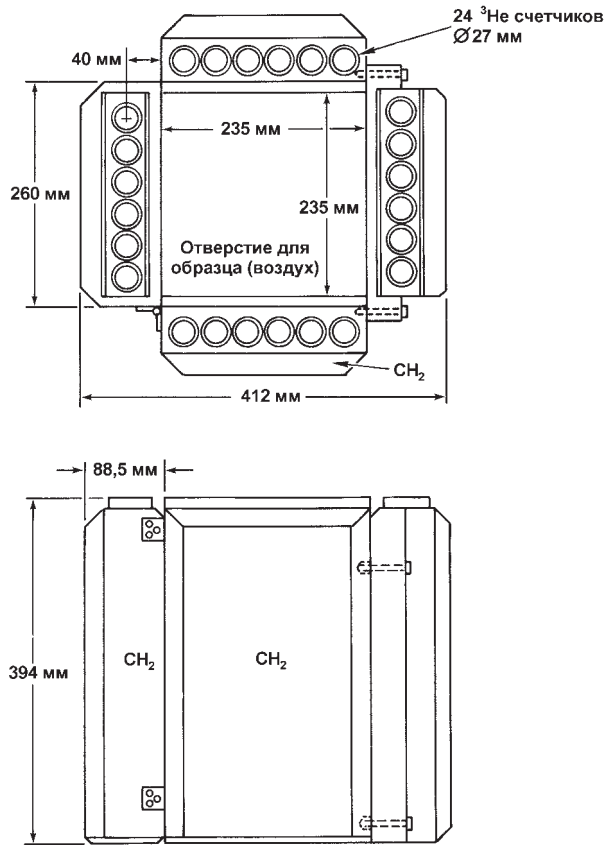


Рис. 17.30. Чертеж пассивного вращающегося счетчика нейтронных совпадений PNCC, используемого для пассивного и активного анализа сборок из смешанного топлива

Скорость счета совпадений R и полная скорость счета T измерялись как с кадмиевым экраном, так и без него. В пассивном режиме градуировочная кривая является функцией R от эффективной массы ^{240}Pu и обычно необходимо вводить поправку на размножение в делящихся компонентах топлива. Для этого могут быть использованы различные методики. Кадмиевое отношение дает возможность определить количество делящегося материала и эффект размножения.

Скорость вынужденного деления от отраженных нейтронов пропорциональна величине $\Delta R = R(\text{без кадмия}) - R(\text{с кадмием})$. Однако величина ΔR также пропорциональна общему выходу первичных нейтронов, который отличается для каждой сборки. Устранить это влияние можно, пронормировав ΔR на T , тогда получается величина $\Delta R/T$, которая характеризует только содержание делящегося материала и не зависит от общего потока нейтронов из сборки.

Предварительные измерения со сборками для быстрого реактора были проведены в Англии на установке в Уиндскейл [26]. Использовались как активный, так и пассивный методы. Рис. 17.31 показывает результаты измерений. Нижняя кривая описывает обычные результаты измерения эффективной массы ^{240}Pu с кадмиевыми экранами, верхняя кривая показывает увеличение счета, когда экраны убраны. Это увеличение возникает из-за образования добавочных делений за счет самоподсветки тепловыми нейтронами. Если бы делящийся материал отсутствовал, то не было бы различия между этими кривыми. Результаты испытаний

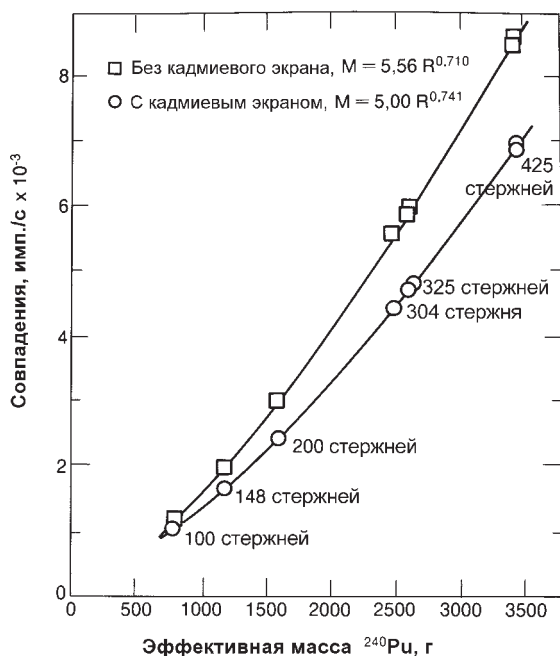


Рис. 17.31. Результаты пассивного анализа установкой PNCC сборок для быстрых реакторов-размножителей с различным количеством стержней

дали стандартное отклонение на уровне 0,75 % для пассивного режима и от 3 до 7 % при активном режиме за время измерений 1000 с. Это оборудование предполагается в будущем использовать для контроля содержания плутония в свежих топливных сборках.

17.3.4. Монитор для входного контроля баллонов с UF₆ RAM

Для обеспечения гарантий и учета высокообогащенного урана, произведенного на заводах по обогащению урана, необходимо измерять содержание ²³⁵U в контейнерах (баллонах) для хранения UF₆. При обогащении выше 20 % по ²³⁵U хранение UF₆ производится в баллонах типа "Модель-5А", которые имеют диаметр 127 и высоту 914 мм. Традиционный метод измерения обогащения этого материала включает регистрацию выхода гамма-излучения изотопа ²³⁵U с энергией 186 кэВ в непосредственной близости от поверхности контейнера. В работе [27] описана новая методика определения содержания ²³⁵U в контейнере "Модель-5А" с UF₆. Пассивный метод совпадений, основанный на эффекте самоподсветки, был признан после оценки возможных применений нейтронного счетчика совпадений. Монитор RAM, который был разработан для применения этой методики, показан на рис. 17.32.

Монитор RAM [27] содержит 20 штук ³He-счетчиков с активной длиной 61 см. Кадмиевые экраны на ³He-счетчиках используются для получения постоянной эффективности вдоль высоты баллона с UF₆, которая обычно составляет от 30 до 40 см. Быстрая электроника типа АМРТЕК встроена в верхнюю крышку детектора, причем в этой области предусмотрены специальные материалы для смягчения возможных ударов при загрузке контейнера с материалом внутрь детектора. Уникальной особенностью установки RAM является то, что она имеет механически перемещаемый кадмиевый экран, который может управляться либо



Рис. 17.32. Монитор RAM входного контроля для проверки содержания ^{235}U в UF_6 в баллонах типа "Модель-5А"

вручную, либо с помощью внешнего микропроцессора. Обычная процедура анализа состоит в измерении продолжительностью 120 с при снятом кадмиевом экране и измерении в течение 360 с при установленном экране с погрешностью определения скорости счета около 0,5 %.

В этой новой пассивно-активной методике нейтроны (α, n)-реакций в UF_6 вызывают вынужденные деления в ^{235}U . Так как (α, n)-нейтроны случайны во времени, скорость счета совпадений R дает прямое измерение скорости вынужденного деления. Выход (α, n)-источника самоподсветки определяется путем измерения полной скорости счета T . Отношение T/R пропорционально $M(M-1)$, где M — умножение нейтронов утечки, которое не зависит от величины полного потока (α, n)-нейтронов. Величина $M(M-1)$, таким образом, полностью соответствует содержанию ^{235}U .

Первичным источником (α, n)-нейтронов в обогащенном UF_6 являются альфа-частицы распада ^{234}U , взаимодействующие с атомами фтора (см. табл. 11.3 в главе 11). Кроме того, ^{232}U также дает некоторый вклад в общее количество альфа-частиц. Имеется вклад связанных во времени нейтронов от спонтанного деления ^{238}U . Их выход невелик ($1,36 \times 10^{-2}$ нейтр./с-г ^{238}U) и им можно пренебречь в случае больших обогащений из-за уменьшения доли ^{238}U и увеличения доли ^{234}U . Величина вклада спонтанных делений ^{238}U составляет около 10 % от сигнала для ^{235}U при обогащении 20 % по ^{235}U и менее 1 % при обогащении более 50 % по ^{235}U (см. табл. 14.3 и 14.4 в главе 14).

На рис. 17.33 показаны результаты анализа для 38 баллонов типа "Модель-5А" с UF_6 , полученные с помощью методики самоподсветки [27]. Отношение R/T было скорректировано с учетом эффекта увеличения полной скорости счета, который имеет место при удалении кадмиевого экрана. Эта поправка помогает скомпенсировать изменения плотности UF_6 и эффект саморазмножения при переходе от одного баллона к другому. Наблюдаемый разброс результатов отно-

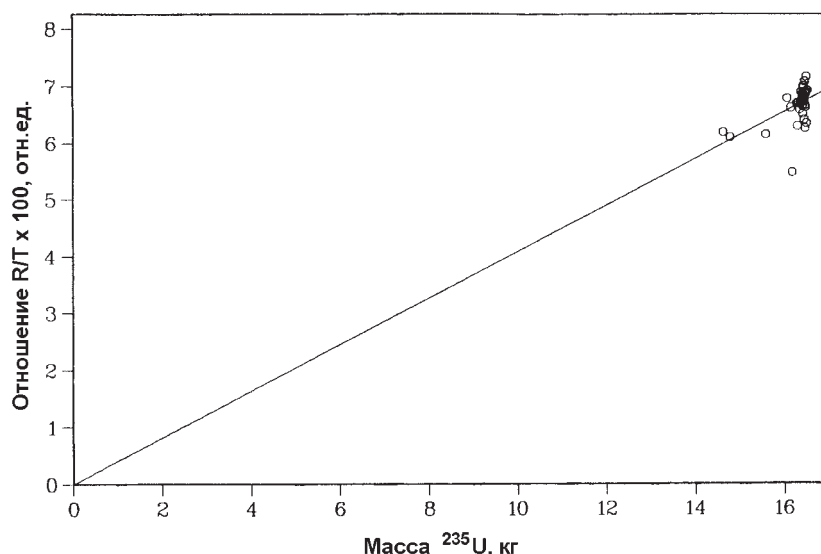


Рис. 17.33. Результаты анализа установкой RAM содержания UF_6 в 38 баллонах типа "Модель-5А". Показано измеренное в пассивном режиме отношение R/T как функция содержания ^{235}U , исправленное с учетом эффекта увеличения полной скорости счета при удалении кадмиевого экрана

сительно аппроксимирующей кривой составляет около 10 % (1σ) без поправки и 2,8 % с поправкой. Можно ожидать, что этот разброс будет уменьшен, когда механизм поправки, основанный на выдвижном кадмиевом экране, будет лучше понят. На рис. 17.33 не показаны результаты для многих частично заполненных баллонов, но скорректированное отношение R/T обеспечит почти линейную градуировочную кривую, что даст возможность определить содержание ^{235}U в широком диапазоне высот заполнения.

ЛИТЕРАТУРА

1. J.E. Foley and L.R. Cowder, "Assay of the Uranium Content of Rover Scrap with the Random Source Interrogation System," Los Alamos Scientific Laboratory report LA-5692-MS (1974).
2. D. Langner, T. Canada, N. Ensslin, T. Atwell, H. Baxman, L. Cowder, L. Speir, T. Van Lyssel, and T. Sampson, "The CMB-8 Material Balance System," Los Alamos Scientific Laboratory report LA-8194-M (August 1980).
3. T. Gozani, *Active Nondestructive Assay of Nuclear Materials, Principles and Applications*, NUREG/CR-0602 and SAI-MLM-2585, (US Nuclear Regulatory Commission, Washington, DC, 1981).
4. J.E. Swansen, P.R. Collinsworth, and M.S. Krick, "Shift-Register Coincidence Electronics System for Thermal Neutron Counters," *Nuclear Instruments and Methods* 176, 555 (1980).
5. M.S. Krick and H.O. Menlove, "The High-Level Neutron Coincidence Counter (HLNCC): Users' Manual," Los Alamos Scientific Laboratory report LA-7779-M (1978).

6. J.E. Foley, "4 π Neutron Counter for 55-Gallon Barrels," in "Nuclear Safeguards Research and Development Program Status Report, September-December 1970," Los Alamos Scientific Laboratory report LA-4605-MS (January 1971), pp.24-26.
7. J.E. Swansen, "Dead-Time Reduction in Thermal Neutron Coincidence Counters," Los Alamos National Laboratory report LA-9936-MS (1984).
8. M.S. Krick and H.O. Menlove, "Channel Coincidence Counter: Version I," Los Alamos Scientific Laboratory report LA-8404-MS (June 1980).
9. A.J.G. Ramalho, E. Dahn, E.G. Selleck, V. Kupryashkin, and A. Dubreuil, "The High-Level Neutron Coincidence Counter (HLNCC) Family of Detectors and Its Use," International Symposium on Recent Advances in Nuclear Materials Safeguards, Vienna, Austria, November 8-12, 1982, International Atomic Energy Agency report IAEA-SM-260.
10. L. Cowder and H.O. Menlove, "Neutron Coincidence Counter for MOX Fuel Pins in Storage Trays: Users' Manual," Los Alamos National Laboratory report LA-9493-M (August 1982).
11. G.W. Eccleston, H.O. Menlove, and O.R. Holbrooks, "Universal Fast Breeder Reactor (FBR) Coincidence Counter Design," in "Safeguards and Security Status Report, February–July 1982," J. Shipley and D. Smith, Comps., Los Alamos National Laboratory report LA-9595-PR (February 1983), pp.29-31.
12. H.O. Menlove, O.R. Holbrooks and A. Ramalho, "Inventory Sample Coincidence Counter Manual," Los Alamos National Laboratory report LA-9544-M (November 1982).
13. N. Ensslin, E. Adams, D. Bowersox, and J. Stewart, "Neutron Coincidence Counting of Plutonium Solutions," *Transactions of the American Nuclear Society* 39, 335-336(1981).
14. H.O. Menlove, E.L. Adams, and O.R. Holbrooks, "Plutonium Nitrate Bottle Counter Manual," Los Alamos National Laboratory report LA-10009-M (1984).
15. N. Ensslin, M.L. Evans, H.O. Menlove, and J.E. Swansen, "Neutron Coincidence Counters for Plutonium Measurements," *Nuclear Materials Management* VII (2), 43-65 (1978).
16. N. Ensslin, A. Gibbs, C. Denard, and P. Deason, "Test and Evaluation of the Dual-Range Coincidence Counter at the Savannah River Plant," Los Alamos National Laboratory report LA-8803-MS (April 1981).
17. G.A. Westsik, "Rockwell Dual Range Coincidence Counter," Rockwell Hanford Operations report RHO-QA-SA-004 (1984).
18. H.O. Menlove, "Description and Operation Manual for the Active Well Coincidence Counter," Los Alamos Scientific Laboratory report LA-7823-M (1979).
19. H.O. Menlove, N. Ensslin, and T.E. Sampson, "Experimental Comparison of the Active Well Coincidence Counter with the Random Driver," Los Alamos Scientific Laboratory report LA-7882-MS (1979).
20. M.S. Krick and P.M. Rinard, "Field Tests and Evaluations of the IAEA Active Well Coincidence Counter," Los Alamos National Laboratory report LA-9608-MS (December 1982).

21. R. Sher, "Active Neutron Coincidence Counter for the Assay of MTR Fuel Elements," Los Alamos National Laboratory report LA-9665-MS (February 1983).
22. H.O. Menlove, "Description and Performance Characteristics for the Neutron Coincidence Collar for the Verification of Reactor Fuel Assemblies," Los Alamos Scientific Laboratory report LA-8939-MS (August 1981).
23. C. Beets, "Optimization of NDA Measurements in Field Conditions for Safeguards Purposes," Centre D'Etude de L'Energie Nucleaire Third Progress Report BLG553 – Contract RB/2274 (January 1982).
24. H.O. Menlove and A. Keddar, "Field Test and Evaluation of the IAEA Coincidence Collar for the Measurement of Unirradiated BWR Fuel Assemblies," Los Alamos Scientific Laboratory report LA-9375-MS (December 1982).
25. H.O. Menlove, "Passive/Active Coincidence Collar for Total Plutonium Measurement of MOX Fuel Assemblies" Los Alamos Scientific Laboratory report LA-9288-MS (May 1982).
26. H.O. Menlove and A. Keddar, "Field Test and Evaluation of the Passive Neutron Coincidence Collar for Prototype Fast Reactor Fuel Subassemblies," Los Alamos Scientific Laboratory report LA-9449-MS (August 1982).
27. J.E. Stewart, N. Ensslin, H.O. Menlove, L.R. Cowder, and P.J. Polk, "Confirmatory Measurement of UF_6 Using the Neutron Self-Interrogation Method," Proc. Inst. Nucl. Math. Manage. Conference, Albuquerque, New Mexico, July 1985, Los Alamos National Laboratory document LA-UR 85-2567.

Глава 18

Измерения облученного топлива

Дж. Р. Филлипс
(Переводчик А.Н. Григорьев)

18.1 ВВЕДЕНИЕ

В США работает свыше 100 атомных электростанций с общей установленной мощностью более 85 ГВт (гигаватт, 1 ГВт = 10^9 Вт) [1]. Ежегодно из этих реакторов выгружается от 5000 до 10000 облученных тепловыделяющих сборок (ТВС). Некоторые сборки в течение года или двух лет охлаждаются, а затем снова загружаются в реактор для оптимизации выгорания остаточного делящегося материала; другие, достигнув максимального проектного значения выгорания, помещаются в бассейн выдержки рядом с реактором до тех пор, пока они не будут отправлены на объект долговременного хранения или на захоронение. Эти тысячи ТВС поштучно пересчитываются, а в качестве учетных данных используются заявленные оператором значения обеднения первоначального делящегося материала (^{235}U или ^{239}Pu) и значения накопления делящихся изотопов плутония (^{239}Pu и ^{241}Pu). Чтобы усовершенствовать этот не совсем точный метод учета, был разработан ряд методик неразрушающих измерений для проверки заявленных оператором величин.

Перед облучением можно получить характеристики реакторного топлива, применяя методики измерения излучения гамма-квантов и нейтронов, рассмотренные в главах 7, 8, 15 и 17. Однако после значительного облучения топлива в реакторе характеристики урана и плутония полностью искажаются из-за излучения продуктов деления, активированных элементов конструкции сборок и трансурановых элементов, образующихся в результате процесса деления. Таким образом, ни измерения гамма-излучения, ни измерения нейтронов из облученного топлива не дают количественных характеристик ^{235}U , ^{239}Pu или ^{241}Pu . Вместо них для оценки этих величин должны использоваться косвенные характеристики, базирующиеся на характеристиках излучения продуктов деления или трансурановых элементов и применяющиеся для определения выгорания и времени охлаждения облученного топлива. Из величин выгорания затем могут быть определены расчетными методиками величины накопления ^{239}Pu и ^{241}Pu в топливе.

Можно также использовать методики активного нейтронного анализа для определения количества делящегося материала, присутствующего в облученных ТВС. Для этих методик требуется применение источника нейтронов (например, ^{252}Cf) или ускорителя, и в большинстве случаев необходимо стационарное оборудование.

В этой главе рассматриваются физические характеристики реакторного топлива (раздел 18.2), косвенные характеристики выгорания (раздел 18.3) и измерения гамма- и нейтронного излучения облученного топлива (разделы 18.4 и 18.5). В разделе 18.6 обобщаются пассивные и активные методы оценки содержания плутония в облученном топливе.

18.2 ХАРАКТЕРИСТИКИ РЕАКТОРНОГО ТОПЛИВА

18.2.1 Физическое описание

За исключением одного высокотемпературного реактора с газовым охлаждением (Форт Сант-Врейн), все энергетические реакторы, работающие в настоящее время в США, являются реакторами с водой под давлением (PWR) или реакторами на кипящей воде (BWR). Проводятся исследования на быстрых реакторах-размножителях (FBR). Параметры топлива и активной зоны реакторов PWR, BWR и FBR сравниваются в табл. 18.1 [2 и 3]. На рис. 18.1 показаны отличия в габаритных размерах топливных стержней и тепловыделяющих сборок.

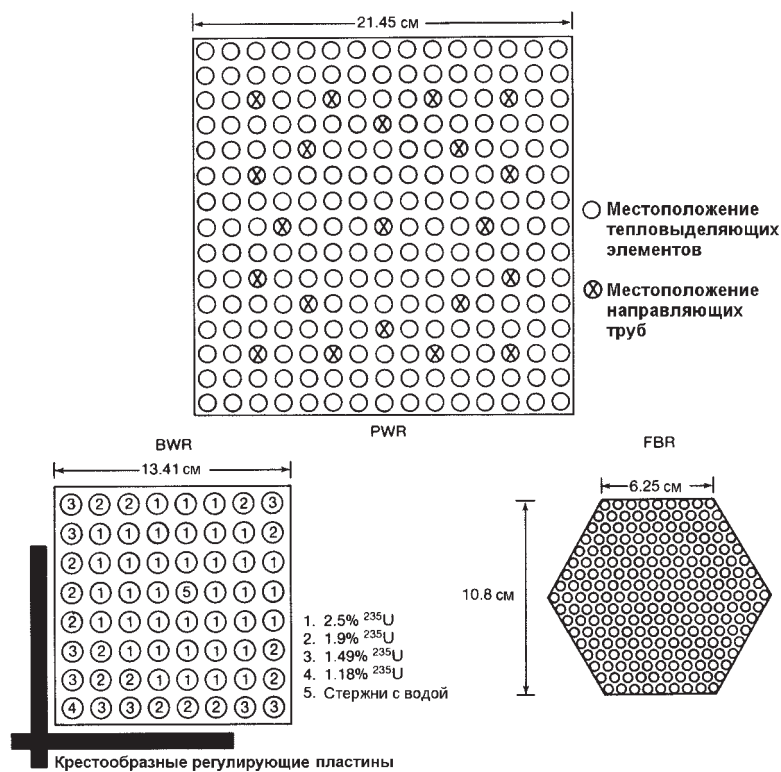


Рис. 18.1. Поперечное сечение тепловыделяющих сборок реактора с водой под давлением PWR (вверху), реактора на кипящей воде BWR (внизу слева) и быстрого реактора — размножителя FBR (внизу справа)

Исходное реакторное топливо состоит из делящегося (^{235}U или ^{239}Pu) и воспроизводящего материалов (^{238}U). Эти материалы обычно присутствуют в форме керамических оксидов или карбидов, учитывая их коррозионную стойкость, относительную простоту изготовления и очень хорошие характеристики в части радиационной стойкости. В реакторах PWR или BWR топливо находится в виде керамических таблеток UO_2 , имеющих 1 см в диаметре и длину 2 см. Таблетки укладываются в трубки из нержавеющей стали или циркалоя стопками до активной длины 3,7 м. Циркалой представляет собой циркониевый сплав, используемый

большей частью в стержнях для PWR и BWR из-за его малого сечения поглощения нейтронов. Для предотвращения химической реакции с воздухом, водой или другими материалами, используемыми для охлаждения, топливо помещается в оболочку из специального материала.

Когда облученные топливные стержни рубятся и выщелачиваются во время переработки, образуются отходы переработки отработанных ТВЭЛов (принятое название “шелуха” — прим. пер.). Остающийся в шелухе делящийся материал образует особый вид облученного топлива. Измерения этого материала важны для обеспечения приемлемого учета ядерных материалов в технологическом процессе [4].

Таблица 18.1 – Параметры топлива и активной зоны реакторов

	PWR	BWR	FBR
<u>Параметры топлива</u>			
Материал оболочки	Циркалой-4	Циркалой-2	SS 316
Диаметр оболочки, см	0,95	1,23	0,74
Толщина оболочки, см	0,06	0,08	0,03
Материал топлива, см	UO ₂	UO ₂	(U,Pu)O ₂
Исходное обогащение по ²³⁵ U	2,1/2,6/3,1 %	2,8 % (средн.)	25 % Pu
Диаметр таблетки, см	0,82	1,04	0,67
Высота таблетки, см	1,5	1,04	0,7
Решетка сборки	15 × 15 или 17 × 17	8 × 8	шестигранник (17 по диагонали)
Число топливных стержней в сборке	201 или 264	63	217
<u>Параметры активной зоны</u>			
Число тепловыделяющих сборок	193	740	394
Общее количество топлива, кг	98 000	150 000	25 000
Диаметр активной зоны, см	340	366	222
Высота активной зоны, см	366	376	91
КПД, %	33	34	39
Проектное выгорание топлива, гВт-сут/т U	33	28	100
Цикл перегрузки топлива	1/3 всего топлива в год	1/4 всего топлива в год	1/3 всего топлива в год

18.2.2 Определение выгорания и глубины выгорания

Два общепринятых термина для облучения топлива — выгорание и глубина выгорания часто применяются как взаимозаменяемые. Выгорание (в процентах атомов) определяется как число делений на 100 тяжелых ядер (урана или плутония), первоначально присутствующих в топливе. Глубина выгорания определяется как полная энергия, высвобождаемая при делении тяжелых ядер, первоначально присутствующих в топливе. (В российской практике оба определения относятся к термину "выгорание" — прим. ред.) Глубина выгорания имеет размерность мегаватт- или гигаватт-сутки (тепловой выход реактора) на метрическую тонну (1000 кг) исходного урана: МВт·сут/т U или ГВт·сут/т U. Для неразрушающих измерений облученного топлива последнее определение более полезно, потому что реальное содержание тяжелых ядер непосредственно не определяется.

Эти два определения приблизительно связаны следующим уравнением:

$$1 \text{ ат.}\% \text{ выгорания} \approx 9,6 \text{ ГВт} \cdot \text{сут} / \text{т U} \quad (18.1)$$

Зависимость между выгоранием и глубиной выгорания изменяется как функция выгорания из-за изменения отношения делений урана к делениям плутония. Количество энергии, высвобождаемой при делении плутония (212 МэВ) приблизительно на 5 % больше количества энергии, высвобождаемой при делении изотопа ^{235}U (202 МэВ).

Средние проектные значения выгорания реакторного топлива включены в табл. 18.1. Реальные значения могут находиться в диапазоне от 55 до 60 ГВт·сут/т U для PWR, от 45 до 50 ГВт·сут/т U для BWR и 150 ГВт·сут/т U для FBR.

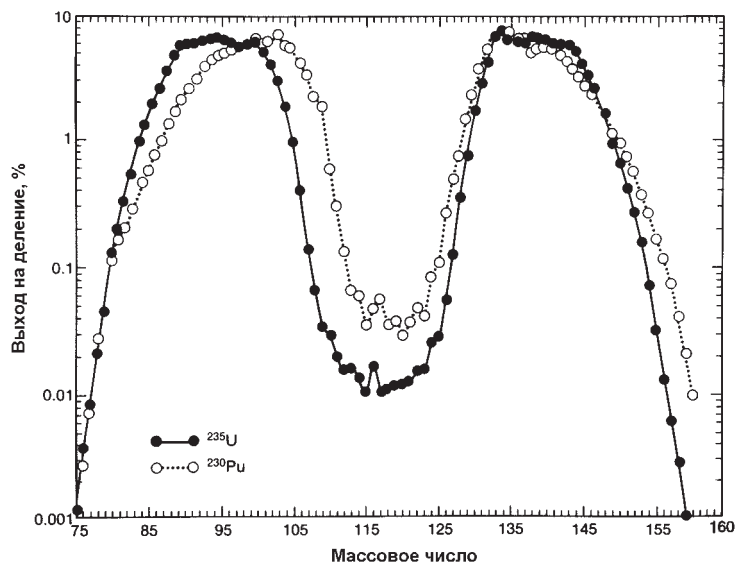
18.2.3 Выход продуктов деления

При реакциях деления первичными источниками энергии являются деление ^{235}U , ^{239}Pu и ^{241}Pu с некоторым вкладом от деления ^{238}U быстрыми нейтронами. В табл. 18.2 [5] перечислены относительные количества делений для каждого из этих четырех изотопов в зависимости от глубины выгорания топлива для одного типичного случая. Таблица показывает, что изотопы плутония начинают вносить значительный вклад в общую сумму только после того, как значение глубины выгорания составит несколько ГВт·сут/т U, а после того, как глубина выгорания составит свыше 20 ГВт·сут/т U, они становятся доминирующим источником деления.

Каждое деление приводит к образованию двух продуктов деления со средней массой. На рис. 18.2 [6 и 7] показаны кривые распределения массы для деления тепловыми нейтронами ^{235}U и ^{239}Pu . Основное отличие между двумя кривыми состоит в незначительном смещении кривой для ^{239}Pu в сторону более высоких массовых чисел относительно кривой для ^{235}U . Смещение хорошо видно для относительного выхода ^{106}Ru при делении ^{235}U и ^{239}Pu . Деления в ^{239}Pu дают выход ^{106}Ru в 11 раз больше, чем деления ^{235}U . Таким образом, измерение выхода гамма-излучения из изотопа ^{106}Ru может определить относительную долю делений ^{239}Pu к полному числу делений. С другой стороны, изотоп, подобный ^{137}Cs , имеет почти одинаковые выходы при делении как изотопа ^{235}U , так и ^{239}Pu . Выход гамма-излучения от ^{137}Cs может быть использован для определения полного числа делений.

Таблица 18.2 – Полное число делений (в процентах) как функция глубины выгорания топлива для реактора PWR с первоначальным обогащением 2,56% ^{235}U

Глубина выгорания, ГВт·сут/т U	^{235}U	^{238}U	^{239}Pu	^{241}Pu
0	100,0	0,0	0,0	0,0
1,2	88,1	6,7	5,1	0,01
4,7	76,3	6,9	16,4	0,35
9,9	60,6	7,4	29,6	2,4
15,1	49,5	7,8	37,5	5,3
20,0	41,1	8,1	42,8	8,0
25,6	32,9	8,5	47,3	11,3
29,6	27,6	8,8	40,9	13,7
34,7	23,8	9,9	58,2	18,1
40,0	16,7	9,3	55,3	18,7
46,8	11,7	9,6	57,5	21,2

**Рис. 18.2.** Массовое распределение продуктов деления при делении ^{235}U и ^{239}Pu тепловыми нейтронами [6 и 7]

Большинство продуктов деления первоначально содержат избыточное количество нейтронов и подвергаются бета-распаду, переходя к устойчивому со-

стоянию. Кроме излучения бета-частиц продукты деления также излучают гамма-кванты, характеристики которых можно измерить. На рис. 18.3 показан спектр гамма-излучения тепловыделяющей сборки PWR, имеющей интегральную глубину выгорания 32 ГВт·сут/т U и время охлаждения 9 месяцев (время после выгрузки из реактора). Как можно видеть из этого спектра, существует только около 10 изотопов, которые можно измерить. В табл. 18.3 [8] перечислены доминирующие изотопы наряду с характеристиками их гамма-квантов и периодом полураспада. Выход на деление — это среднее число образованных ядер каждого изотопа (в процентах) на одно деление тепловыми нейтронами ^{235}U или ^{239}Pu . Кроме гамма-квантов продуктов деления, также присутствуют гамма-кванты, образованные при активации оболочки топлива и таких материалов, как ^{54}Mn , ^{58}Co и ^{60}Co , которые также присутствуют в конструкции; они включены в табл. 18.3.

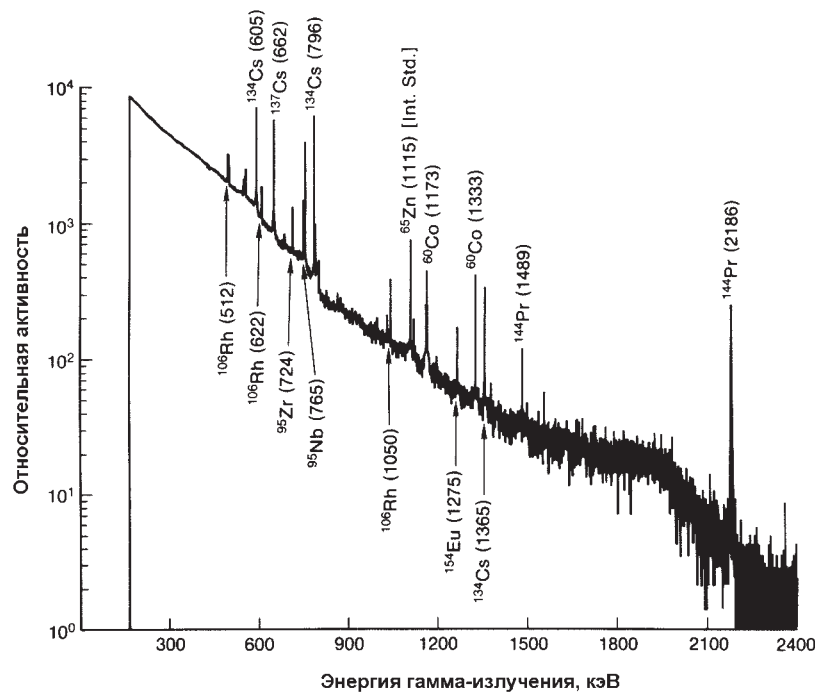


Рис. 18.3. Спектр гамма-излучения тепловыделяющей сборки реактора PWR с глубиной выгорания 32 ГВт · сут/т U и временем охлаждения 9 месяцев

Облучаемый нейтронами уран может также захватить нейтроны и образовать трансурановые элементы, как это показано на рис. 18.4 [5]. Многие из этих нуклидов испускают нейтроны при спонтанном делении или реакции (α, n). Интенсивности образования нейтронов при спонтанном делении и реакции (α, n) для источников первичных нейтронов — ^{238}Pu , ^{240}Pu , ^{242}Pu , ^{241}Am , ^{242}Cm и ^{244}Cm — включены в табл. 11.1 и 11.3 в главе 11.

Таблица 18.3 – Изотопы, идентифицируемые с помощью гамма-квантов в типовой сборке облученного топлива [8]

Изотопы продуктов деления	Период полураспада	Выход на деление ^{235}U , %	Выход на деление ^{239}Pu , %	Энергия гамма-излу- чения, кэВ	Доля распада, %
^{95}Zr	64,0 сут	6,50	4,89	724,2	43,1
				756,7	54,6
^{95}Nb	35,0 сут	6,50	4,89	765,8	99,8
^{103}Ru	39,4 сут	3,04	6,95	497,1	86,4
				610,3	5,4
$^{106}\text{Ru-Rh}$	366,4 сут	0,40	4,28	622,2	9,8
				1050,5	1,6
^{134}Cs	2,06 года	$1,27 \times 10^{-5*}$	$9,89 \times 10^{-4*}$	604,7	97,6
				795,8	85,4
				801,8	8,7
				1167,9	1,8
^{137}Cs	30,17 года	6,22	6,69	1365,1	3,0
				661,6	85,1
$^{144}\text{Ce-Pr}$	284,5 сут	5,48	3,74	696,5	1,3
				1489,2	0,3
				2185,6	0,7
^{154}Eu	8,5 года	$2,69 \times 10^{-6*}$	$9,22 \times 10^{-5*}$	996,3	10,3
				1004,8	17,4
				1274,4	35,5
Продукты активации					
^{54}Mn	312,2 сут			834,8	100,0
^{58}Co	70,3 сут			811,1	99,0
^{60}Co	5,27 года			1173,2	100,0
				1332,5	100,0

* Значения для ^{154}Eu и ^{134}Cs даются только для непосредственного образования изотопа при делении. На самом деле каждый из этих изотопов в первую очередь образуется путем поглощения нейтронов. Для топливного материала реактора PWR, облученного до глубины выгорания 25 ГВт-сут/т U, “накопленный выход на деление” изотопов ^{154}Eu и ^{134}Cs составил, соответственно, 0,15 и 0,46 %.

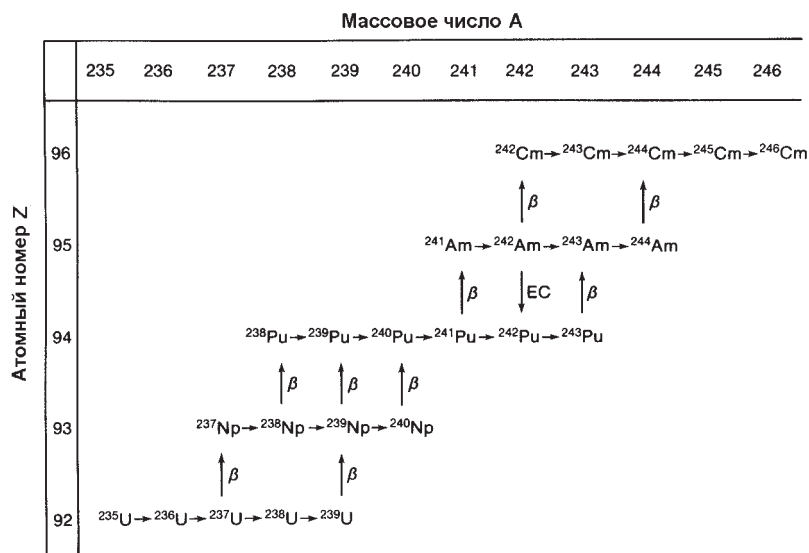


Рис. 18.4. Основные реакции захвата нейтронов (горизонтальные стрелки) и реакции бета-распада (вертикальные стрелки), приводящие к образованию в облученном топливе трансураниевых элементов. Для изотопов ^{240}Np , ^{242}Am и ^{244}Am существуют как стабильные, так и метастабильные состояния

Гамма-кванты продуктов деления и нейтроны из ядер трансураниевых элементов полностью маскируют гамма-кванты и нейтроны изотопов урана и плутония в топливе. Этот эффект показан в табл. 18.4, в которой перечислены относительные плотности атомов и выход гамма-излучения на грамм исходного урана для ^{137}Cs , линии 186 кэВ ^{235}U и линии 414 кэВ ^{239}Pu . Эти результаты основаны на реальной предыстории облучения тепловыделяющей сборки в реакторе PWR. Топливо имело первоначальное обогащение 2,6 % ^{235}U и облучалось в течение четырех реакторных циклов до достижения максимальной глубины выгорания 46,8 ГВт·сут/т U. Плотности продуктов деления и трансураниевых элементов рассчитывались с помощью программы оценки обеднения реакторного топлива [6 и 7]. Даже несмотря на то, что плотности атомов для ^{137}Cs , ^{235}U и ^{239}Pu сравнимы для глубины выгорания 46,8 ГВт·сут/т U, число излученных гамма-квантов ^{137}Cs составляет в $4,5 \times 10^7$ и $2,7 \times 10^7$ раз больше, чем число гамма-квантов основных изотопов ^{235}U и ^{239}Pu , соответственно. Изотоп ^{137}Cs является одним из 10 доминирующих продуктов деления, излучающих гамма-кванты.

Похожие результаты получаются, когда проводят исследования выхода нейтронов из облученных топливных материалов. В табл. 18.5 [4] приведен выход нейтронов из уранового оксидного топлива после достижения глубины выгорания, равной 33,0 ГВт·сут/т U, и времени охлаждения 1 год. Выход собственных нейтронов из плутония уступает на 2 порядка величине выхода нейтронов из изотопов кюрия.

Таблица 18.4 – Сравнение атомной плотности и активности гамма-излучения ^{137}Cs , ^{235}U и ^{239}Pu

Глубина выгорания, ГВт·сут/г U	^{137}Cs		^{235}U		^{239}Pu	
	атомная плот- ность*	линия 661,6 кэВ, квант/г U	атомная плот- ность*	линия 185,72 кэВ, квант/г U	атомная плот- ность*	линия 413,69 кэВ, квант/г U
0	0,0	0,0	$6,28 \times 10^{19}$	$1,06 \times 10^3$	0,0	0,0
1,2	$1,94 \times 10^{17}$	$1,20 \times 10^8$	$5,94 \times 10^{19}$	$1,00 \times 10^3$	$1,66 \times 10^{18}$	$2,28 \times 10^1$
4,7	$7,63 \times 10^{17}$	$4,73 \times 10^8$	$5,05 \times 10^{19}$	$8,51 \times 10^2$	$5,39 \times 10^{18}$	$7,41 \times 10^1$
9,9	$1,60 \times 10^{18}$	$9,94 \times 10^8$	$3,98 \times 10^{19}$	$6,70 \times 10^2$	$8,74 \times 10^{18}$	$1,20 \times 10^2$
15,1	$2,43 \times 10^{18}$	$1,51 \times 10^9$	$3,12 \times 10^{19}$	$5,25 \times 10^2$	$1,05 \times 10^{19}$	$1,44 \times 10^2$
20,0	$3,17 \times 10^{18}$	$1,97 \times 10^9$	$2,47 \times 10^{19}$	$4,16 \times 10^2$	$1,14 \times 10^{19}$	$1,57 \times 10^2$
25,6	$4,05 \times 10^{18}$	$2,51 \times 10^9$	$1,87 \times 10^{19}$	$3,14 \times 10^2$	$1,19 \times 10^{19}$	$1,64 \times 10^2$
29,6	$4,64 \times 10^{18}$	$2,87 \times 10^9$	$1,52 \times 10^{19}$	$2,56 \times 10^2$	$1,20 \times 10^{19}$	$1,65 \times 10^2$
34,7	$5,40 \times 10^{18}$	$3,35 \times 10^9$	$1,15 \times 10^{19}$	$1,94 \times 10^2$	$1,20 \times 10^{19}$	$1,65 \times 10^2$
40,0	$6,15 \times 10^{18}$	$3,81 \times 10^9$	$8,59 \times 10^{18}$	$1,45 \times 10^2$	$1,20 \times 10^{19}$	$1,65 \times 10^2$
46,8	$7,14 \times 10^{18}$	$4,43 \times 10^9$	$5,80 \times 10^{18}$	$9,78 \times 10^1$	$1,18 \times 10^{19}$	$1,62 \times 10^2$

* Число атомов на грамм исходного тяжелого металла

Таблица 18.5 – Типичная интенсивность образования нейтронов из оксидного топлива

Изотоп	г/г U	n(СД*)/с·г U	n(α ,n)/с·г U
^{238}Pu	$1,35 \times 10^2$	$3,67 \times 10^5$	$2,48 \times 10^6$
^{240}Pu	$2,32 \times 10^3$	$2,02 \times 10^6$	$4,66 \times 10^5$
^{242}Pu	$4,61 \times 10^2$	$8,16 \times 10^5$	
^{241}Am	$8,83 \times 10^1$		$3,21 \times 10^5$
^{242}Cm	2,43	$5,44 \times 10^7$	$1,15 \times 10^7$
^{244}Cm	18,3	$2,07 \times 10^8$	$1,88 \times 10^6$
		$2,65 \times 10^8$	$1,66 \times 10^7$

* СД – спонтанное деление (прим. пер.)

18.3 КОСВЕННЫЕ ХАРАКТЕРИСТИКИ ВЫГОРАНИЯ ТОПЛИВА

Как описывается в разделе 18.2.3, при пассивном анализе нейтронного или гамма-излучения облученного топлива нельзя непосредственно измерить содержание делящихся элементов или выгорание топлива из-за высоких уровней окружающей радиации. В этом разделе рассматривается множество косвенных методов для качественного или количественного определения выгорания топлива, при применении многих из которых как раз используются высокие уровни окружающей радиации.

18.3.1 Физические атрибутивные признаки

Перед определением выгорания инспектор может провести идентификацию сборок облученного топлива и проверить их массы. Тепловыделяющие сборки представляют собой отдельные опечатанные единицы с идентификационными номерами. Если вода в бассейне выдержки чистая, идентификационный номер можно прочесть с помощью комплекта биноклей через плавающее плексигласовое окошко, используемое для устранения ряби. Если вода слишком грязная для того, чтобы осуществить эту простую проверку, можно использовать подводный перископ или видеокамеру, использующиеся на многих реакторных бассейнах выдержки. Информация о физической целостности тепловыделяющей сборки может быть получена с помощью динамометрического датчика для определения массы. Большинство бассейнов выдержки имеют крановый механизм для перемещения тепловыделяющих сборок, на котором можно смонтировать такой динамометрический датчик.

При визуальном контроле тепловыделяющей сборки обычно можно идентифицировать, была ли она в активной зоне реактора. Свежая тепловыделяющая сборка имеет блестящую поверхность, в то время как поверхность облученной тепловыделяющей сборки подвержена незначительному окислению, вызывающему появление тусклой красноватой пленки. Кроме того, на сборке облученного топлива может образоваться визуально определяемая корочка, и сборка может оказаться чуть искривленной или скрученной.

18.3.2 Черенковское излучение

Гамма-кванты продуктов деления или активации производят электроны, которые приводят к черенковскому излучению. Таким образом, измерения черенковского излучения можно использовать для идентификации присутствия материала, испускающего гамма-излучение. Эта косвенная характеристика может применяться для проверки сборок отработавшего топлива, хранящегося под водой [9 и 10].

Электромагнитное черенковское излучение образуется всякий раз, когда заряженная частица проходит через среду со скоростью, превышающей фазовую скорость света в этой среде. В воде фазовая скорость света составляет около 75 % от величины фазовой скорости в вакууме. Таким образом, например, любой электрон, проходящий через воду и имеющий кинетическую энергию, равную по крайней мере 0,26 МэВ, будет генерировать черенковское излучение. Сборки облученного топлива являются сильным источником бета-частиц, гамма-квантов и

нейтронов. Все три вида излучения могут непосредственно или косвенно образовывать черенковское излучение.

Наиболее значительное образование черенковского излучения происходит от высокоэнергетического гамма-излучения продуктов деления, которое взаимодействует с оболочкой топлива или водой из бассейна выдержки. При этом взаимодействии образуются электроны и позитроны в результате комптоновского рассеяния или других процессов. Расчеты количества фотонов черенковского излучения, генерируемых из этих бета-частиц, показывают, что образование черенковского излучения в диапазоне длин волн видимого света от 4000 до 6000 ангстрем (4×10^{-7} до 6×10^{-7} м) пренебрежительно мало для гамма-квантов с энергией ниже 0,5 МэВ, но резко увеличивается с повышением энергии. Гамма-кванты с энергией 2 МэВ производят в 500 раз больше фотонов черенковского излучения по сравнению с гамма-квантами с энергией 0,6 МэВ.

Общий уровень черенковского излучения и его затухание во времени связаны с выгоранием. Сокращение переключения ядерного материала либо путем подмены топливных сборок холостыми, либо неправильно заявленным значением выгорания затруднительно, если можно точно измерить интенсивность черенковского излучения.

18.3.3 Интенсивность гамма-излучения отдельных продуктов деления

Образование определенных продуктов деления может быть использовано в качестве количественной меры выгорания. Полная интенсивность гамма-излучения определенного продукта деления может служить средством контроля выгорания, если удовлетворяются следующие условия [11]:

1. Продукт деления должен иметь равные выходы на деление основных делящихся изотопов урана и плутония. Если выходы сильно отличаются, то эффективный выход будет зависеть частично от характера протекания процесса в реакторе.

2. Сечение захвата нейтронов продуктом деления должно быть достаточно малым, чтобы концентрация исследуемого продукта деления была обусловлена только делением тяжелого элемента, а не вторичными реакциями захвата нейтронов.

3. Период полураспада продукта деления должен быть длительным по сравнению со временем облучения топлива, чтобы количество образованного продукта деления было приблизительно пропорционально числу делений.

4. Гамма-кванты продуктов деления должны обладать относительно высокой энергией (500 кэВ или больше), чтобы они могли покинуть топливный стержень. Для стержня оксидного топлива диаметром 1 см 39 % гамма-квантов изотопа ^{137}Cs с энергией 662 кэВ поглощаются внутри стержня. Это сильное поглощение приводит к тому, что измерение пассивного гамма-излучения тепловыделяющих сборок практически ограничивается внешними рядами стержней. Следующая сложность заключается в том, что неравномерный поток нейтронов во время облучения может привести к неравномерному выгоранию внутри сборки. Это особенно верно для тепловыделяющих сборок реактора BWR, так как две стороны каждой сборки примыкают к регулирующим пластинам.

Если вышеуказанные условия выполняются, измеренная интенсивность гамма-излучения I (имп./с) продукта деления пропорциональна числу ядер продукта деления N , образованных во время облучения топлива:

$$I = \epsilon k S N \lambda e^{-\lambda T}, \quad (18.2)$$

где ϵ — полная эффективность детектора;
 k — квантовый выход;
 S — поправка на ослабление;
 λ — интенсивность распада продуктов деления;
 T — время охлаждения.

После решения уравнения (18.2) относительно N , выгорание топлива может быть рассчитано из уравнения

$$\text{Выгорание в ат.\%} = 100 \times (N / Y) / U, \quad (18.3)$$

где Y — эффективный выход продуктов деления;
 U — число исходных атомов урана.

Цезий-137 — наиболее широко применяемый индикатор выгорания топлива, так как сечение поглощения им нейтронов пренебрежимо мало, выходы на деление ^{235}U и ^{239}Pu приблизительно равны, а 30-летний период полураспада делает необязательным введение поправки на изменение во времени мощности реактора. На рис. 18.5 показано расчетное накопление изотопа ^{137}Cs для тепловыделяющей сборки реактора PWR с глубиной выгорания 46,8 ГВт·сут/т U, рассмотренной в разделе 18.2.3. Накопление ^{137}Cs имеет приблизительно линейный характер по всему диапазону выгорания. Сравнение измеренной активности ^{137}Cs с выгоранием приводится в разделе 18.4.3. Существующий опыт с контролем выгорания

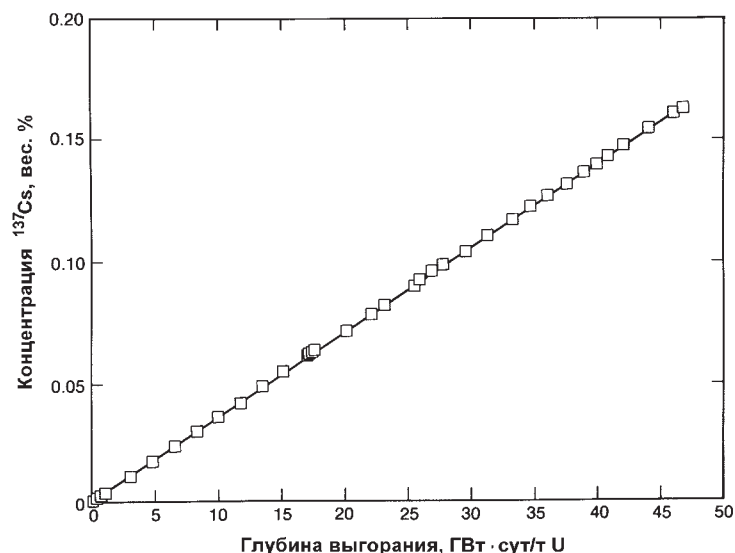


Рис. 18.5. Расчетная зависимость концентрации продукта деления ^{137}Cs , выраженная в процентах от исходной концентрации урана при глубине выгорания тепловыделяющей сборки реактора PWR, описанной в разделе 18.2.3, равной 46,8 ГВт·сут/т U

^{137}Cs показывает, что измерение абсолютной активности ^{137}Cs может определить выгорание с точностью от 1 до 4 % для отдельных ТВЭЛов.

Для измерения гамма-излучения выщелоченных отходов переработки отработанных ТВЭЛов гамма-линия $^{144}\text{Ce-Pr}$ с энергией 2186 кэВ является более предпочтительной, чем гамма-линия ^{137}Cs с энергией 662 кэВ, благодаря ее большей проникающей способности и потому, что $^{144}\text{Ce-Pr}$ менее восприимчив к выщелачиванию во время растворения топлива.

18.3.4 Полная интенсивность гамма-излучения

Полная интенсивность гамма-излучения облученного топлива является суммой интенсивностей излучения каждого продукта деления и трансуранового элемента, полученных из уравнения, аналогичного уравнению (18.2). Большая часть интенсивности гамма-излучения определяется несколькими важными продуктами деления. Вклад каждого продукта деления в общую интенсивность изменяется со временем охлаждения, как это проиллюстрировано в примере, представленном на рис. 18.6. Для времени охлаждения, большем чем 1 год, полная интенсивность гамма-излучения приблизительно пропорциональна выгоранию. Для более коротких времен охлаждения эта зависимость не выдерживается, потому что полная интенсивность гамма-излучения в большей степени определяется накоплением и распадом короткоживущих продуктов деления, подобных ^{95}Nb и ^{95}Zr . Концентрация этих изотопов зависит частично от характера протекания рабочего процесса реактора и близости материалов стержней регулирования реактора. После более продолжительного времени охлаждения короткоживущие изотопы распадаются, а отклик детектора в первую очередь определяется долгоживущими изотопами, концентрация которых в меньшей степени зависит от характера протекания рабочего процесса и других факторов.

Наиболее быстрый способ определения достоверности заявленных оператором значений выгорания и времени охлаждения был разработан с использованием полной интенсивности гамма-излучения [12 и 13]. Полная интенсивность гам-

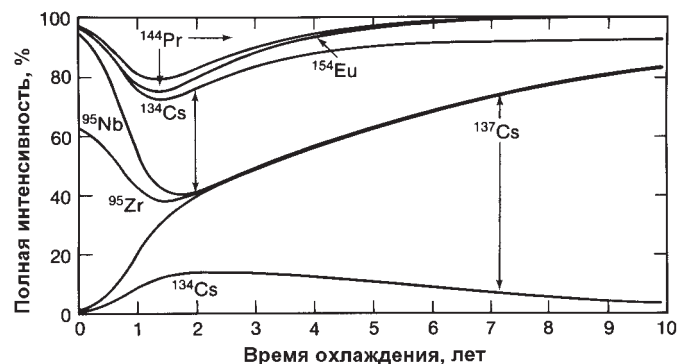


Рис. 18.6. Пример изменения интенсивности гамма-излучения продуктов деления в зависимости от времени охлаждения. Интенсивность основных гамма-линий каждого продукта деления представлена в виде относительного вклада в полную интенсивность. Обратите внимание, что изотопы ^{144}Pr и ^{134}Cs имеют две основные гамма-линии. Кривые основаны на измерениях тепловыделяющей сборки реактора PWR с глубиной выгорания 12,18 ГВт-сут/т U и временем охлаждения 2 года. Экстраполяция для более продолжительных и более коротких времен охлаждения сделана расчетным путем

ма-излучения делится на заявленное выгорание и выражается графической зависимостью от заявленных времен охлаждения. Результатом является зависимость в виде формулы aT^b , где a и b — масштабные параметры, а T — время охлаждения. Пример этой зависимости для тепловыделяющих сборок реактора PWR приводится на рис. 18.7. Форма кривой в первую очередь обусловлена периодом полураспада изотопов ^{134}Cs и ^{137}Cs .

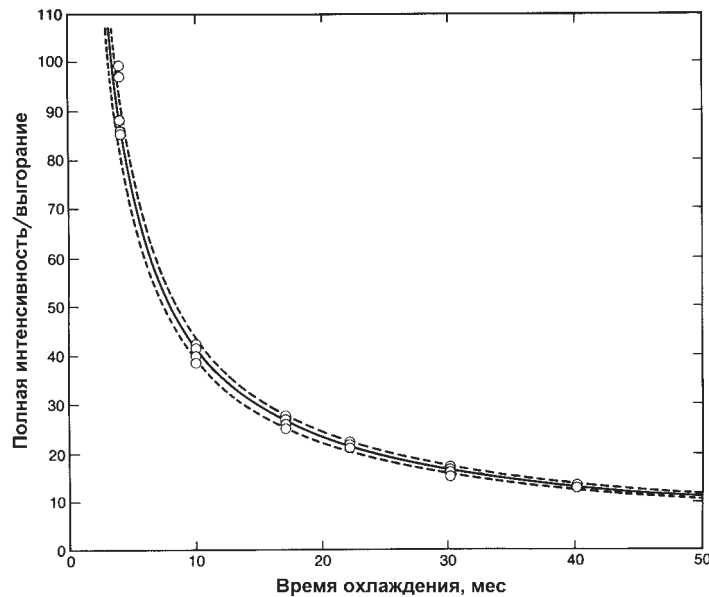


Рис. 18.7. Измеренная полная интенсивность, деленная на выгорание, в зависимости от времени охлаждения для тепловыделяющих сборок реактора PWR. Аппроксимирующая кривая иллюстрирует, как полная интенсивность может быть использована для проверки достоверности заявленных оператором значений выгорания и времени охлаждения

18.3.5 Отношение активностей продуктов деления

Выгорание облученного топлива может также определяться из отношений концентраций некоторых изотопов продуктов деления. Отношения изотопов можно определять из отношений интенсивностей гамма-излучений, применяя уравнения, аналогичные уравнению (18.2). Двумя наиболее широко применяемыми изотопными отношениями являются отношения $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ и $^{154}\text{Eu}/^{137}\text{Cs}$.

^{134}Cs образуется при захвате нейтронов изотопом ^{133}Cs , следовательно, для его образования требуются два нейтронных взаимодействия. В первом — нейтрон вызывает деление урана или плутония, а вторым является реакция $^{133}\text{Cs}(n,\gamma)$. Так как эти взаимодействия являются основным источником образования ^{134}Cs , концентрация ^{134}Cs в топливе приблизительно пропорциональна квадрату интегрального потока нейтронов. Разделив концентрацию изотопа ^{134}Cs на концентрацию ^{137}Cs , которая прямо пропорциональна интегральному потоку, отношение становится приблизительно пропорциональным выгоранию (полному потоку). Это — упрощенное объяснение, так как существуют и другие факторы, такие, как спектральная зависимость сечения (n,γ), которые должны учитываться для уста-

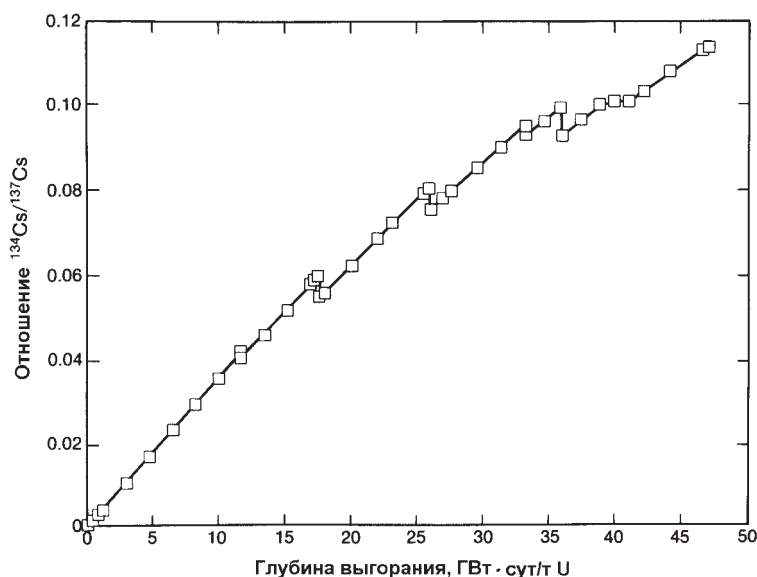


Рис. 18.8. Расчетная зависимость отношения изотопов $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ от глубины выгорания для тепловыделяющей сборки реактора PWR, описанной в разделе 18.2.3. Скачки кривой обусловлены перерывами в процессе работы реактора

новления более точного отношения. Однако практически отношение изотопов $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ хорошо работало для определения выгорания для топливных материалов как легководного реактора, так и быстрого реактора-размножителя [14 и 15]. Отношение изотопов $^{154}\text{Eu}/^{137}\text{Cs}$ также имеет почти линейную зависимость от удельной глубины выгорания [8 и 16].

На рис. 18.8 показано расчетное отношение изотопов $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ в виде функции глубины выгорания тепловыделяющей сборки реактора PWR с глубиной выгорания 46,8 ГВт·сут/т U, описанной в разделе 18.2.3. Скачки на кривой рис. 18.8 обусловлены скачками в характере протекания рабочего процесса реактора, что подчеркивает тот факт, что для применения изотопного отношения требуется введение поправки, учитывающей распад изотопов. Эта поправка важна для отношения $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ из-за 2,06-летнего периода полураспада ^{134}Cs . Для отношения изотопов $^{154}\text{Eu}/^{137}\text{Cs}$ 8,5-летний период полураспада изотопа ^{154}Eu и 30,2-летний период полураспада ^{137}Cs делают поправку менее важной. Вообще градуировочные кривые рассчитываются ко времени выгрузки сборки, чтобы устранить влияние различных интенсивностей распада продуктов деления. Было предложено несколько методик определения поправок на время охлаждения путем исследования определенных отношений изотопов [13, 16-18].

Для полевых измерений намного легче определить отношения активностей продуктов деления, нежели абсолютные активности, поскольку должны быть известны только относительные эффективности детектора. Однако необходимо проводить поправку на изменения эффективности регистрации с энергией гамма-излучения. Гамма-кванты изотопов ^{134}Cs , ^{137}Cs и ^{154}Eu имеют разные энергии и, следовательно, различные эффективности регистрации. Градуировка относительной эффективности может быть выполнена, используя множественные гамма-кванты изотопов ^{134}Cs и ^{154}Eu ; процедура идентична той, что описана в разде-

ле 8.4.1 главы 8 для определения кривой относительной эффективности для измерений изотопного состава плутония. Градуировка позволяет получить относительную эффективность регистрации соответствующих гамма-квантов, используя только спектр исходного гамма-излучения.

18.3.6 Полный выход нейтронов

Измерение полного выхода нейтронов из облученного топлива может также служить в качестве индикатора выгорания и имеет как преимущества, так и недостатки по сравнению с измерением интенсивности гамма-излучения. Нейтронный сигнал приходит только из топлива, а не из материала оболочки ТВЭЛа. Ослабление нейтронов внутри тепловыделяющей сборки меньше, чем ослабление гамма-излучения; фактически, вынужденные деления внутри сборки приводят к приблизительно равным откликам внутренних и внешних топливных стержней. Измерения нейтронов могут быть сделаны сразу после выгрузки топлива из реактора, в то время, как сигнал гамма-излучения еще определяется в первую очередь распадом короткоживущих изотопов, которые отражают недавние уровни мощности реактора. Недостатки нейтронного сигнала заключаются в том, что количество изотопов, испускающих первичные нейтроны, косвенно коррелирует с глубиной выгорания. Кроме того, в принципе, детекторы нейтронов чувствительны к гамма-излучению, хотя камеры делений, используемые сейчас для измерений, практически почти полностью нечувствительны к нему.

Пять основных источников нейтронов в тепловыделяющей сборке реактора PWR с типичной глубиной выгорания 31,5 ГВт·сут/т U показаны на графике рис. 18.9 в виде функции времени охлаждения. Для других тепловыделяющих

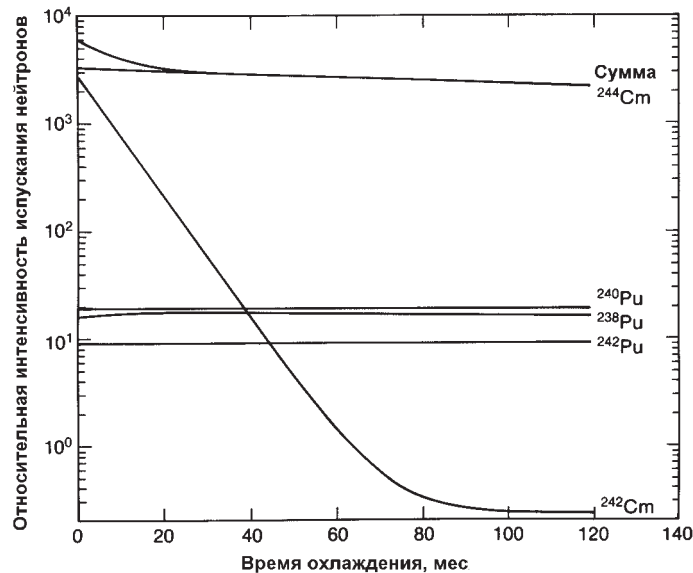


Рис. 18.9. Пять основных источников нейтронов в тепловыделяющей сборке реактора PWR с глубиной выгорания 31,5 ГВт·сут/т U. При длительном времени охлаждения распад ²⁴²Cm следует за распадом его материнского изотопа ^{242m}Am, метастабильного состояния ²⁴²Am с периодом полураспада 153 года

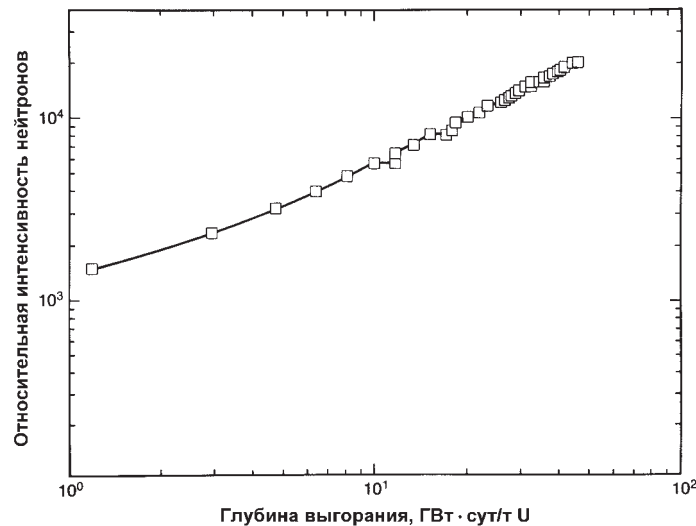


Рис. 18.10. Расчетная зависимость полного выхода нейтронов от глубины выгорания для тепловыделяющей сборки реактора PWR, описанной в разделе 18.2.3

сборок или других уровней выгорания, изотопы ^{241}Am или ^{246}Cm также могут быть значительными источниками нейтронов. Однако двумя доминирующими изотопами, испускающими нейтроны, обычно являются ^{244}Cm и ^{242}Cm . Из-за коротких периодов полураспада этих двух изотопов (18,1 и 0,45 года, соответственно) время охлаждения топлива должно быть известно для того, чтобы правильно интерпретировать полный выход нейтронов. Значения времени охлаждения, заявленные оператором, могут быть проверены путем измерения полной интенсивности гамма-излучения, как описано в разделе 18.3.4.

На рис. 18.10 показана расчетная зависимость между полным выходом нейтронов и глубиной выгорания для тепловыделяющей сборки реактора PWR, описанной в разделе 18.2.3. Свыше значения глубины выгорания, равного 10 ГВт·сут/т U, зависимость может быть аппроксимирована следующей эмпирической степенной функцией:

$$\text{Скорость счета нейтронов} = \alpha (\text{глубина выгорания})^\beta. \quad (18.4)$$

Справедливость уравнения (18.4) доказана для большого разнообразия топлива легководных реакторов [19-22] и делает возможным определение выгорания, измеряя полный выход нейтронов. Значения β обычно лежат между 3,0 и 4,0.

Скорость накопления основных трансурановых изотопов, испускающих нейтроны, относительно нечувствительна к плотности исходного топлива и уровню мощности; однако исходное обогащение изотопом ^{235}U и предыстория облучения топлива могут значительно повлиять на интенсивность накопления этих изотопов. На рис. 18.11 показано влияние исходного обогащения ^{235}U на скорость испускания нейтронов (эффекты ослабления и размножения не учитывались при определении этих величин). Для идентичной глубины выгорания низкообогащенное топливо имеет более высокую скорость испускания нейтронов. Низкообогащенное топливо имеет меньше делящегося материала на единицу объема и, следовательно, требует более высокого флюенса нейтронов для того, чтобы до-

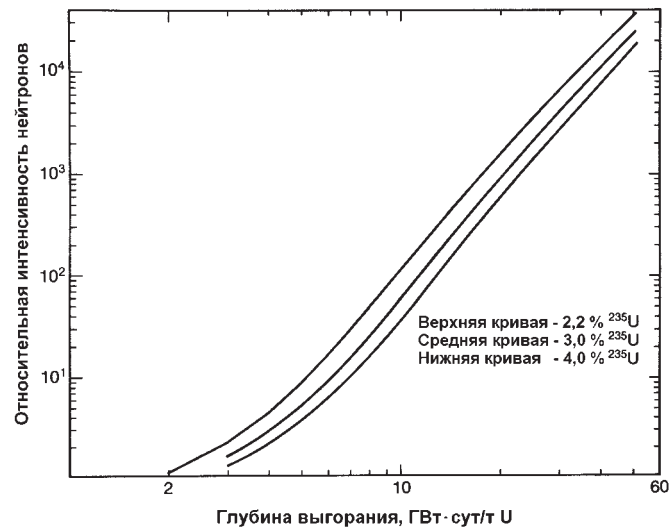


Рис. 18.11. Расчетная зависимость полного выхода нейтронов от исходного обогащения топлива для идентичных значений глубины выгорания. Расчеты сделаны для тепловыделяющей сборки реактора PWR, описанной в разделе 18.2.3

стигнуть того же выгорания, что и высокообогащенное топливо. Более высокий флюенс нейтронов приводит к большему накоплению ²⁴²Cm и ²⁴⁴Cm и, соответственно, более высокой интенсивности испускания нейтронов.

Циклические предистории облучения могут также оказывать значительное влияние на интенсивность испускания нейтронов, как это показано кривыми, представленными на рис. 18.12. Влияние циклической предистории облучения

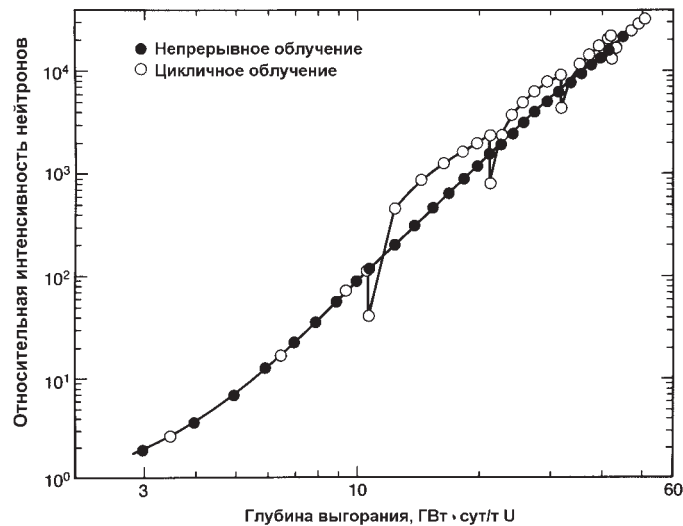


Рис. 18.12. Расчетная зависимость полного выхода нейтронов от предистории эксплуатации реактора для тепловыделяющей сборки реактора PWR, описанной в разделе 18.2.3. Непрерывная 5-летняя предистория облучения (темные кружки) сравнивается с циклической предисторией чередования облучения и охлаждения (светлые кружки)

кратковременно, благодаря, в первую очередь, повышенному образованию ^{242}Cm , следующему за любым периодом времени охлаждения. В течение любого периода, свободного от облучения, ^{241}Pu (период полураспада 14,35 г.) распадается, образуя ^{241}Am (период полураспада 433,6 г.). Когда этот материал повторно оказывается под действием нейтронного потока, образуются большие количества ^{242}Cm путем захвата нейтронов изотопом ^{241}Am . Если топливо было бы измерено после более продолжительного времени охлаждения (~2 лет), большая часть ^{242}Cm распалась бы, и измеренные скорости испускания нейтронов более бы соответствовали скоростям, полученным для материала топлива, которое подвергалось непрерывному облучению.

18.4 ГАММА-ИЗМЕРЕНИЯ ОБЛУЧЕННОГО ТОПЛИВА

18.4.1 Измерения полной интенсивности гамма-излучения

Полная интенсивность гамма-излучения погруженной в воду ТВС может быть измерена ионизационными камерами, сцинтилляторами или термолюминесцентными дозиметрами (ТЛД). Ионизационные камеры и сцинтилляторы обеспечивают непосредственное считывание показаний всего за 1-2 мин, необходимые для установки детекторов и сбора данных. Термолюминесцентные дозиметры необходимо вытаскивать из воды и снимать показания с помощью специальной аппаратуры. На рис. 18.13 представлена геометрия, применяемая для гамма-измерений облученных ТВС, и показана ионизационная камера, размещенная в верхней части тепловыделяющей сборки.

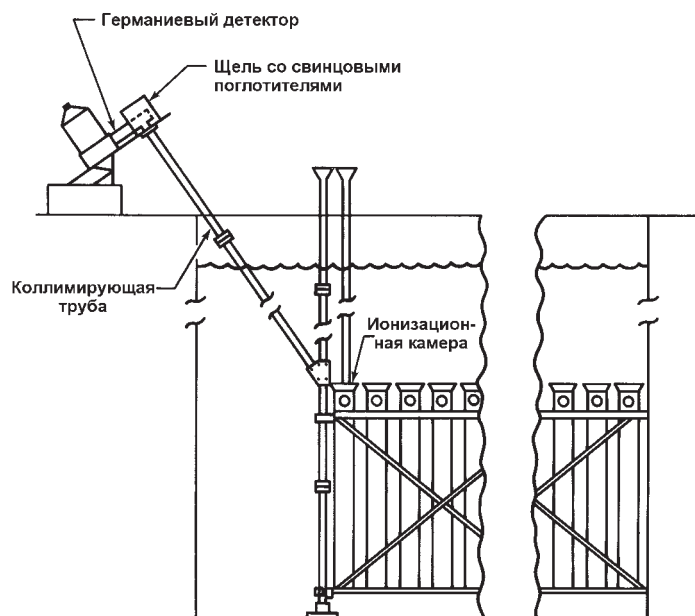


Рис. 18.13. Гамма-измерения облученного топлива в бассейне выдержки. На рисунке показан германиевый детектор высокого разрешения с коллимирующей трубой и ионизационной камерой, установленной сверху бассейна выдержки. При проведении измерений тепловыделяющая сборка поднимается вертикально

Когда полная интенсивность гамма-излучения измеряется в верхней части ТВС, то сигнал определяется в первую очередь продуктами активации ^{60}Co , ^{58}Co и ^{54}Mn в материалах конструкции. Когда тепловыделяющая сборка поднимается со стеллажа бассейна выдержки, но все еще остается в воде, то измерения полной интенсивности гамма-излучения могут быть проведены вдоль сборки. В этом случае сигнал обусловлен в основном продуктами деления в тепловыделяющих элементах. В этих условиях достоверность заявленных оператором значений времени охлаждения и выгорания проверяется с точностью около 10 %. ТВС с необычными предысториями облучения легко идентифицируются. Ионизационная камера, спроектированная для размещения напротив боковой стороны ТВС, объединена с вилочным детектором, описанным в разделе 18.5.

18.4.2 Измерения интенсивности высокоэнергетического гамма-излучения

Более точные гамма-измерения могут быть проведены детектором на базе $\text{Be}(\gamma, n)$. Такой детектор состоит из ^{235}U -камеры деления, окруженной полиэтиленом, который в свою очередь окружен бериллием. Нейтроны, образованные в фотонейтронной реакции в бериллии, замедляются в полиэтилене до тепловой энергии и регистрируются камерой деления. Так как порог образования фотонейтрона в бериллии равен 1665 кэВ, единственной значительной характеристикой продуктов деления, регистрируемой детектором, является гамма-излучение $^{144}\text{Ce-Pu}$ с энергией 2186 кэВ.

Если детектор $\text{Be}(\gamma, n)$ размещается вдоль материалов облученного топлива, то он будет измерять относительную активность продуктов деления $^{144}\text{Ce-Pu}$ и будет нечувствителен к низкоэнергетическим продуктам активации. Подобно другим гамма-детекторам, этот детектор бесполезен при размещении его сверху облученной тепловыделяющей сборки, потому что гамма-излучение экранируется материалами конструкции. Нейтроны, излучаемые топливом или образованные в бериллии при реакциях $(n, 2n)$, могут давать вклад в измерения фотонейтронов, если их количество значительно.

18.4.3 Гамма-спектрометрия высокого разрешения

Наиболее подробную информацию о выгорании топлива можно получить с помощью гамма-спектрометрии высокого разрешения. Концентрацию конкретных продуктов деления можно определить, измеряя активности отдельных продуктов деления; эти концентрации изотопов могут быть соотнесены с выгоранием топлива (см. раздел 18.3.3). Кроме того, некоторые отношения активностей (интенсивностей гамма-излучения) можно использовать для расчета изотопных отношений продуктов деления, которые могут быть соотнесены с выгоранием (см. раздел 18.3.5).

Целью гамма-измерений высокого разрешения является получение спектров гамма-излучения, которые точно представляют инвентарное количество продуктов деления и активацию всей тепловыделяющей сборки. Аппаратура, необходимая для выполнения этих измерений, более сложная, чем та, которая требуется для измерения полной интенсивности гамма-излучения или измерения черенковского излучения. Для сбора и анализа спектров требуется германиевый детектор со стандартным усилителем с высокой разрешающей способностью и многоканальный анализатор. Магнитный носитель также весьма желателен для записи

данных. Германиевый детектор наблюдает за погруженной в воду ТВС через длинный, заполненный воздухом коллиматор (с минимальной длиной 3 м для защиты от излучения), как показано на рис. 18.13. Оператор для проведения измерений подводит отдельные тепловыделяющие сборки к сканирующей системе.

Заполненный воздухом коллиматор выделяет сегмент из объема ТВС, гамма-спектр которого измеряется. Благодаря своей длине, коллиматор снижает мощность дозы у детектора до приемлемого уровня. Максимальная мощность дозы, полученная с коллиматором длиной 6 м и диаметром 5 см от топлива с глубиной выгорания 40 ГВт-сут/т U с двухлетним сроком охлаждения, составляет около 10 мР/ч. Обычно уровень радиационного фона находится приблизительно в том же диапазоне. Германиевый детектор необходимо экранировать от радиационного фона, иначе детектор потеряет чувствительность к гамма-излучению ТВС. Кроме того, перед детектором можно поместить тонкие пластины свинца, меди и кадмия, чтобы уменьшить интенсивность излучения ТВС.

Самоослабление излучения топливного материала может значительно повлиять на измеряемые сигналы. Например, как обсуждалось в разделе 18.3.5, для определения выгорания ТВС можно использовать отношение изотопов $^{154}\text{Eu}/^{137}\text{Cs}$. Почти 92 % измеренного излучения изотопа ^{137}Cs (661,6 кэВ) возникает в трех наружных рядах топливных стержней в тепловыделяющей сборке реактора PWR [23]. Так как только 78 % квантов ^{154}Eu (1275 кэВ) возникает в этих трех наружных рядах, то по отношению $^{154}\text{Eu}/^{137}\text{Cs}$ нельзя точно охарактеризовать тот же самый сегмент объема ТВС.

Если требуются только относительные значения, то анализ данных измерений с высоким разрешением не труден. Итоговые площади пиков ^{137}Cs , ^{134}Cs и ^{154}Eu можно получить с помощью многоканального анализатора. Концентрации и отношения изотопов можно получить, используя уравнение (18.2). Для отношений изотопов можно получить поправки на относительную эффективность, используя градуировку относительной эффективности, как описано в разделе 18.3.5 [24-26]. Эта методика корректирует отличия в самоослаблении материалов источника, эффективности детекторов и геометрии сканирования. Кроме того, стандартные методы анализа требуют внесения поправок, учитывающих распад изотопов к моменту выгрузки из реактора или к какому-либо другому конкретному времени. Затем можно построить график концентрации ^{137}Cs и изотопных отношений $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ и $^{154}\text{Eu}/^{137}\text{Cs}$ для партии ТВС, чтобы получить относительные значения выгорания. Если доступен хотя бы один способ разрушающего анализа топлива, можно рассчитать абсолютные значения выгорания.

Во многих отчетах (например, [16 и 27]) описывается применение гамма-излучения для определения характеристик облученных топливных материалов. Два таких практических примера представлены на рис. 18.14 и 18.15, на которых сравниваются активность ^{137}Cs и отношение изотопов $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ с выгоранием для 14 ТВС реактора PWR с глубиной выгорания от 16 до 33 ГВт-сут/т U. Каждый набор данных анализировался с помощью регрессионного анализа для получения линейной зависимости. Другие две линии на каждом графике представляют пределы 95 % доверительной вероятности; результат любого последующего измерения будет лежать в этих пределах. Средняя разность между линией регрессии и точками результатов измерений составила 4,9 % для ^{137}Cs и 4,6 % для $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$. Похожие величины с погрешностью от 4 до 8 % можно получить для большинства условий измерений.

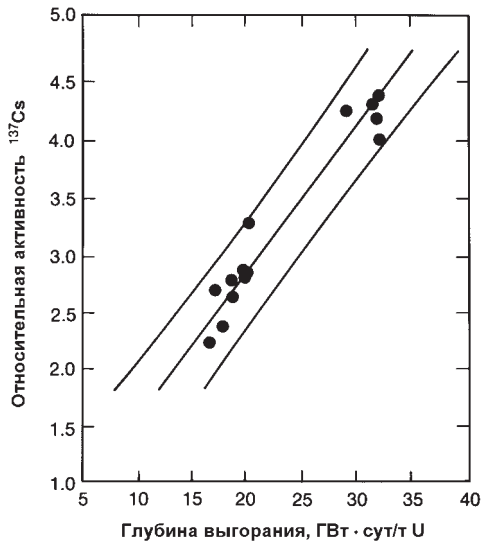


Рис. 18.14. Корреляция измеренной активности ^{137}Cs (произвольные единицы) с заявленной оператором глубиной выгорания для 14 сборок реактора PWR [16]

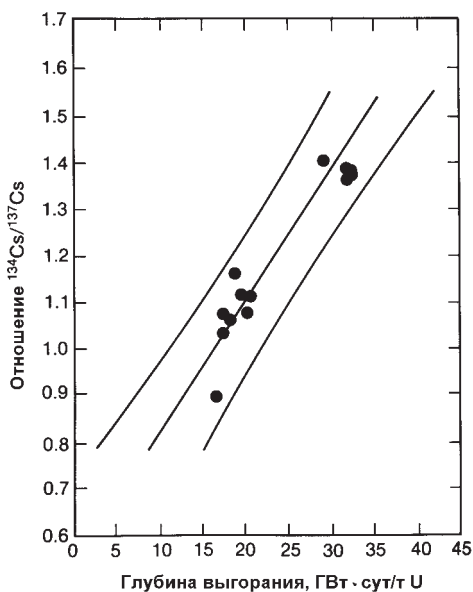


Рис. 18.15. Корреляция измеренного отношения изотопов $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ с заявленной оператором глубиной выгорания для 14 сборок реактора PWR [16]

18.4.4 Измерения черенковского излучения

Измерение черенковского излучения обеспечивает быстрый неразрушающий метод для проверки наличия источника гамма-излучения, распределенного внутри ТВС. Также это измерение можно использовать для обнаружения отсутствия топливного стержня в ТВС. Тепловыделяющие сборки можно контролировать и без размещения какой-либо аппаратуры в воде бассейна выдержки. Однако большую часть искусственного освещения необходимо выключить, чего оператор установки не может допустить. Когда искусственное освещение может быть вы-

ключено, инспектор должен перемещаться практически в темноте, чтобы провести измерения. Поэтому черенковский прибор должен: а) быть легким и переноситься в руке; б) обеспечивать незамедлительный результат измерений; в) быть радиационностойким и г) иметь точность, гарантирующую приемлемые результаты измерений для инвентаризации топлива.

На рис. 18.16 показан прибор, который способен как регистрировать черенковское свечение, так и определять его интенсивность [10]. Прибор состоит из двух основных составных частей: элементов, усиливающих изображение, и электронно-оптического блока, в котором используется трубка фотоумножителя для измерения интенсивности света, проходящего через диафрагму и полевую линзу. Ток на выходе трубки фотоумножителя обеспечивает цифровую индикацию интенсивности поступающего света. Градуировка прибора производится с применением источника света на базе углерода-14 и фосфора, встроенного в специальную головку линзы.



Рис. 18.16. Переносной прибор наблюдения черенковского свечения облученного топлива и определения его интенсивности. Прибор (справа) является адаптацией промышленного прибора ночного видения (слева)

Когда прибором производят горизонтальное сканирование вдоль верхней части сборки, контур изображения очень четкий из-за весьма коллимированного характера черенковского излучения. Для топлива, хранящегося в стандартных вертикальных сборках, отверстия в верхних и поперечных пластинах и промежутки между топливными стержнями служат в качестве каналов черенковского излучения. Эти каналы позволяют излучению проходить через всю длину тепловыделяющей сборки, подвергаемой проверке сверху. Был выполнен ряд измерений в хранилищах для демонстрации полезности метода для быстрой проверки облученных тепловыделяющих сборок [10]. На рис. 18.17 показано изображение черенковского излучения двух ТВС реактора PWR, установленных на стеллаже реакторного бассейна выдержки. Светлые пятна соответствуют каналам вывода свечения из тепловыделяющей сборки с 15×15 стержнями. Смежные ТВС не показывают одинаковые группы светлых пятен, потому что наблюдатель не находится на одной прямой с осями сборок.

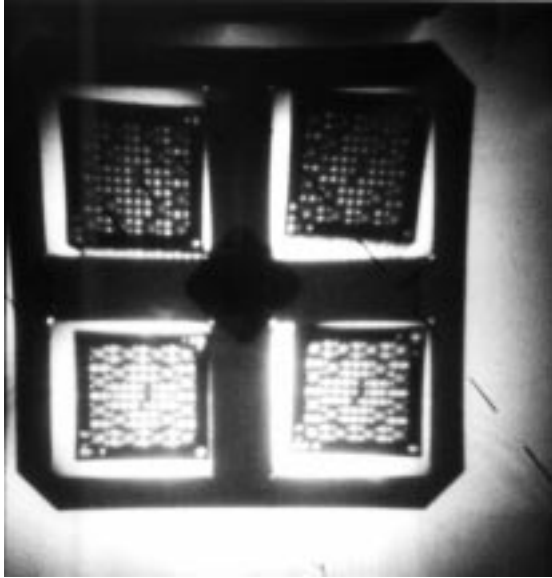


Рис. 18.17. Изображение черенковского свечения двух тепловыделяющих сборок реактора PWR в бассейне выдержки реактора

Измерения черенковского свечения менее восприимчивы к действию смежных сборок, чем измерения интенсивности гамма-излучения, сделанные в верхней части сборок [28]. Это происходит потому, что черенковский свет проходит по каналам вверх по всей длине сборки, в то время как гамма-измерения, сделанные в верхней части, главным образом обусловлены активацией элементов конструкции. Пространственное распространение черенковского свечения, окружающего изолированную облученную сборку в воде, определяется гамма-излучением из наружных стержней сборки. Толщина воды, необходимая для снижения интенсивности гамма-квантов с энергией 1 МэВ в десять раз, составляет ~36 см, что является приемлемой оценкой черенковской "короны" вокруг изолированного точечного источника. Однако излучение продуктов деления из внутренних стержней сборки должно проникнуть в более плотный состав оболочки топлива и промежуточную воду, которая значительно снижает перекрестное действие стержней.

18.5 НЕЙТРОННЫЕ ИЗМЕРЕНИЯ ОБЛУЧЕННОГО ТОПЛИВА

Нейтронные измерения облученного топлива относительно просты и могут обеспечить быстрое определение выгорания. Оборудование для детектирования довольно простое и его обслуживание не представляет особых трудностей, а предварительный анализ данных может быть выполнен и на самой установке. Детектор нейтронов размещается в непосредственной близости от ТВС, а сигнал анализируется с помощью одноканального анализатора. Предпочтительным детектором является камера деления на базе ^{235}U , благодаря ее нечувствительности к гамма-излучению. Хотя нейтроны более легко, чем гамма-кванты, могут проникнуть в ТВС, их ослабление в воде более сильное. Поток гамма-излучения уменьшается в воде в 10 раз на расстоянии приблизительно 36 см, в то время как нейтронный

поток снижается в 10 раз на расстоянии около 10 см. Таким образом, становится важным размещение детектора нейтронов вблизи ТВС.

18.5.1 Вилочный детектор и блок электроники ION-1

На рис. 18.18 проиллюстрирована система измерения нейтронов, разработанная для инспекторов системы гарантий [29 и 30]. Эта система спроектирована для измерения полного потока нейтронов и полной интенсивности гамма-излучения погруженной в воду тепловыделяющей сборки. На рис. 18.19 показаны два основных компонента: вилочный детектор и блок электроники ION-1.

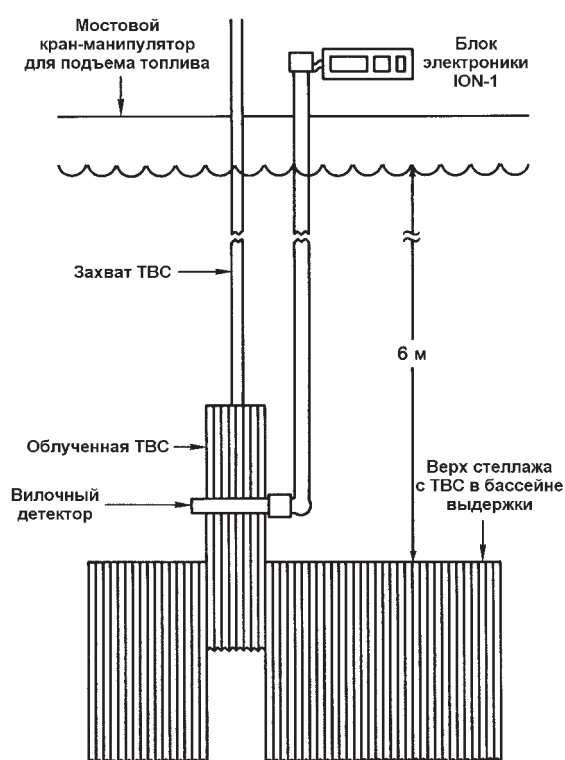


Рис. 18.18. Схема измерительной системы для проведения измерений полного нейтронного и полного гамма-излучения от облученного топлива. Система состоит из блока электроники ION-1, длинной стрелы с кабелем и вилочного детектора

Вилочный детектор представляет собой водонепроницаемый полиэтиленовый детектор, содержащий две группы ионизационных камер и камер деления для одновременного измерения ТВС с двух противоположных сторон. Каждое плечо содержит ионизационную камеру, работающую в токовом режиме для измерения полного выхода гамма-квантов, и две камеры деления, работающие в импульсном режиме для измерения полного выхода нейтронов. В каждом плече одна из камер деления обернута оболочкой из кадмия, а другая — без оболочки. Если необходимо определить содержание бора в воде (обычно 2000 млн.^{-1}) для корректировки скорости счета нейтронов, то это можно сделать, определив отношение числа импульсов в камере деления без оболочки к числу импульсов в открытой кадмием камере [31 и 32]. Вилочный детектор выпускается в двух различ-



Рис. 18.19. Блок электроники ION-1 и вилочный детектор

ных конфигурациях, одна — для сборок реактора PWR, а другая — для сборок реактора BWR.

Блок электроники ION-1 — это микропроцессорный блок с питанием от аккумулятора, который выполняет внутреннюю диагностику и помогает инспектору в сборе и анализе данных [33]. Если измерения необходимо сделать вдоль вертикальной оси тепловыделяющей сборки для того, чтобы получить профиль выгорания по оси, ION-1 позволяет инспектору провести процедуру пошагового сканирования.

Большинство измерений с блоком электроники ION-1 и вилочным детектором проводятся только посередине тепловыделяющей сборки. В среднем от 5 до 7 мин требуется для того, чтобы 1) установить мостовой кран-манипулятор, поднимающий топливо; 2) приподнять тепловыделяющую сборку со стеллажа бассейна; 3) выполнить измерения и 4) опустить тепловыделяющую сборку на стеллаж бассейна выдержки. Включая время на сборку и разборку оборудования, процедура измерений в бассейне выдержки реактора обычно занимает от 2 до 3 дней. С хорошей градуировкой вилочный детектор может определить выгорание отдельных тепловыделяющих сборок с точностью около 5 %.

18.5.2 Нейтронные измерения выгорания

На рис. 18.20 показаны результаты измерений в хранилище облученного топлива реактора BWR. Измеренная интенсивность нейтронов 36 тепловыделяющих сборок BWR показана на графике в зависимости от заявленной глубины выгорания, которая изменяется от 8,5 до 29 ГВт-сут/т U. Видно, что результат измерений одной ТВС с циклическим облучением четко идентифицируется как выброс. Эта отдельная ТВС была облучена до уровня 18,0 ГВт-сут/т U, находилась в бассейне выдержки в течение 3 лет, а затем была возвращена в реактор для дополнительного облучения еще на 3 ГВт-сут/т U. В течение трехлетнего промежутка вре-

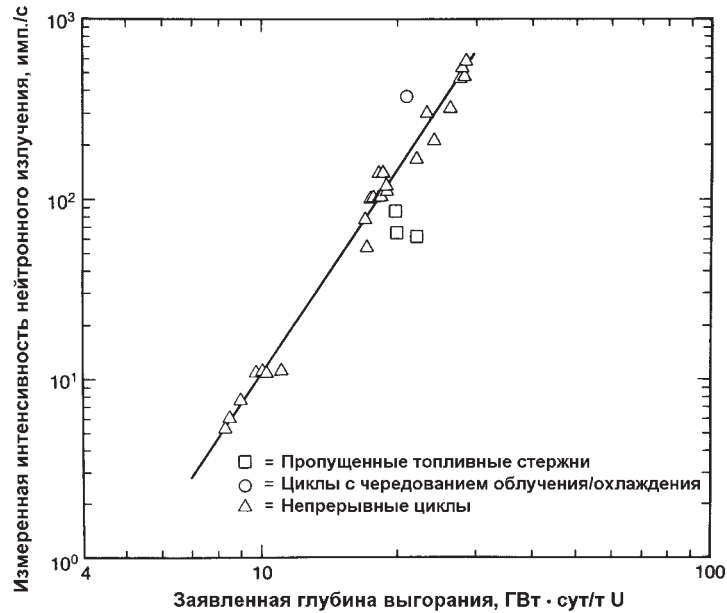


Рис. 18.20. Зависимость измеренной интенсивности нейтронного излучения 36 тепловыделяющих сборок реактора BWR от заявленной глубины выгорания. Сплошная линия представляет собой степенную функцию, описывающую экспериментальные данные

мени между облучениями, ^{241}Pu распался с образованием ^{241}Am , который, в свою очередь, привел к образованию большого количества изотопа ^{242}Cm при повторной загрузке топлива в реактор (см. раздел 18.3.6).

Три других точки данных на рис. 18.20 лежат значительно ниже аппроксимирующей линии. Эти ТВС были собраны из других сборок, имеющих различные значения глубины выгорания. Кроме того, несколько топливных стержней из каждой ТВС были пропущены. Оба этих фактора внесли вклад в снижение измеренной интенсивности испускания нейтронов. Если пересобранные сборки и сборки с цикличной предысторией облучения исключаются из анализа данных, то существует средняя разность в 30 % между заявленным значением глубины выгорания и значениями, полученными из функционального соотношения между скоростью счета и глубиной выгорания (уравнение (18.4)). Эта степенная функция была определена путем подгонки методом наименьших квадратов по экспериментальным данным, и значение β составило 3,7. Путем поправки на время охлаждения, данные по сборке с цикличной предысторией облучения могут быть также хорошо согласованы.

На рис. 18.21 показаны результаты нейтронных измерений, сделанных на хранилище топлива реактора PWR. Отклик 17 ТВС построен в виде функции заявленной глубины выгорания, которая изменялась от 25 до 35 ГВт·сут/т U. Эти данные указывают на влияние обогащения, которое было предсказано расчетами выгорания, описанными в разделе 18.3.6. Четыре сборки с исходным обогащением 2,4 % ^{235}U имеют более высокие скорости счета нейтронов по сравнению со сборками с идентичными глубинами выгорания и временами охлаждения, но с исходным обогащением 3,6 % ^{235}U . Низкообогащенное топливо имеет значительно меньше делящегося материала и, следовательно, требует более высокого флю-

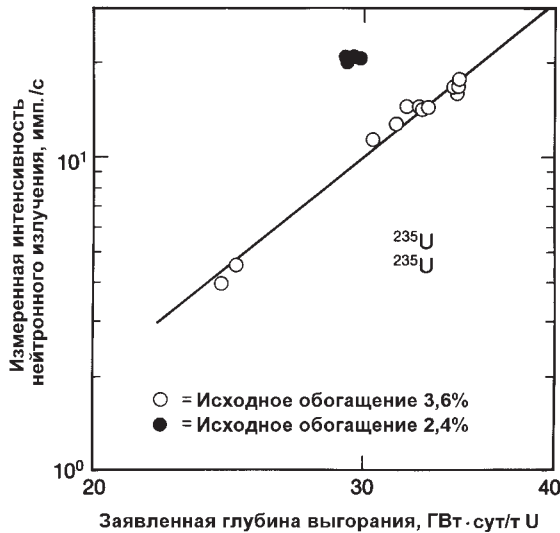


Рис. 18.21. Зависимость измеренной интенсивности нейтронного излучения 17 облученных тепловыделяющих сборок PWR от заявленной глубины выгорания. Сплошная линия представляет собой степенную функцию, описывающую сборки, имеющие исходное обогащение 3,6 %

енса нейтронов для достижения той же глубины выгорания, что и высокообогащенное топливо. Из рисунка видно, что данные по топливу с исходным обогащением 3,6 % образуют степенную зависимость между скоростью счета и глубиной выгорания с $\beta = 3,9$. Заявленные оператором глубины выгорания отличаются от расчетных значений в среднем на 0,9 %.

18.6 ОПРЕДЕЛЕНИЕ СОДЕРЖАНИЯ ДЕЛЯЩИХСЯ МАТЕРИАЛОВ В ОБЛУЧЕННОМ ТОПЛИВЕ

В разделах 18.4 и 18.5 рассматривается множество методов пассивных неразрушающих измерений облученного топлива. Каждый метод обеспечивает косвенное измерение выгорания топлива. Ни уникальные характеристики гамма-излучения, ни нейтронные характеристики изотопов урана или плутония не могут быть измерены непосредственным образом. Для определения реальной концентрации делящихся материалов существуют два возможных подхода. Один метод использует расчетные или определенные эмпирически зависимости, связывающие выгорание с остаточным содержанием ^{235}U и плутония. Другой метод использует активную подсветку нейтронами, чтобы подавить сигнал собственных нейтронов и получить результирующий отклик нейтронов вынужденного деления делящихся изотопов. Оба метода в настоящее время разрабатываются в нескольких странах. Они кратко описаны в конце этого раздела.

18.6.1 Косвенное определение характеристик топлива с помощью пассивных измерений выгорания

Большинство методов пассивных неразрушающих измерений облученного топлива в полевых условиях сейчас ограничиваются проверкой уровней относительного выгорания сборок. При ограничении времени и наличия технического персонала традиционно проводится измерение максимально возможного количе-

ства сборок, но для большинства из них измерение проводится только в одной точке их длины. Если измерения в этой точке представительные, то могут быть получены относительные значения выгорания сборок. Предварительно установленные соотношения между выгоранием и уровнями пассивного излучения затем позволяют проверить тот факт, что результаты измерений соответствуют заявленным значениям выгорания и времени охлаждения (точность заявленных оператором значений выгорания из-за изменений параметров активной зоны не может быть лучше 5 %). Так как очень трудно намеренно удалить делящийся материал из сборок без устранения также источников излучения продуктов деления, эта проверка подразумевает, что делящийся материал остается в целости.

В принципе, содержание делящихся материалов в топливе может быть определено косвенно с помощью измерения сигналов гамма-излучения и нейтронов. Сначала необходимо было бы получить абсолютное значение выгорания топлива с помощью разрушающего анализа части топлива. Затем результаты гамма-измерений высокого разрешения активностей отдельных продуктов деления или отношения активностей продуктов деления могли быть приведены к результатам разрушающего анализа для получения абсолютной градуировки. Измерения нейтронов также могли бы быть связаны с абсолютным значением выгорания. Результаты измерений нейтронов и гамма-излучения следовало бы интегрировать по осевым профилям ТВС, чтобы откорректировать неравномерность выгорания. Чтобы абсолютная градуировка, сделанная на одной установке, была использована и на другой, такая градуировка должна быть откорректирована для различных специфичных для реактора параметров, включая обогащение топлива, предысторию технологического процесса, и концентрации замедлителей и поглотителей. Некоторые примеры влияния таких параметров даны в разделах 18.3.5 и 18.3.6.

Если можно установить абсолютные значения выгорания топлива, то путем расчета можно получить концентрацию делящихся изотопов. Эти расчеты обычно выполняются с помощью таких сложных компьютерных программ, как CINDER [6 и 7]. Пример результатов такого расчета дан на рис. 18.22, на котором построен график зависимости концентрации изотопов плутония от выгорания. Точность таких компьютерных программ для урана и плутония обычно составляет от 5 до 10 %. Если характер протекания процесса в реакторе не известен, то погрешность может возрасти до 5-15 % [11].

Это косвенное определение содержания делящихся материалов путем пассивных измерений собственного излучения трудно осуществимо из-за многих измеряемых переменных и участвующих параметров активной зоны реактора. Косвенная связь содержания делящихся материалов с результатами пассивных измерений страдает от неопределенности, в то время как прямое подтверждение неизменности характеристик топлива по результатам измерения сейчас является хорошо отработанной и надежной методикой.

18.6.2 Определение характеристик топлива методом активной нейтронной подсветки

Непосредственное измерение содержания делящихся материалов в облученном топливе возможно с помощью мощного источника нейтронов, вызывающих деление. Такой источник может быть ускорителем, генератором нейтронов с энергией 14 МэВ или изотопным источником типа RaBe, SbBe или калифорния.

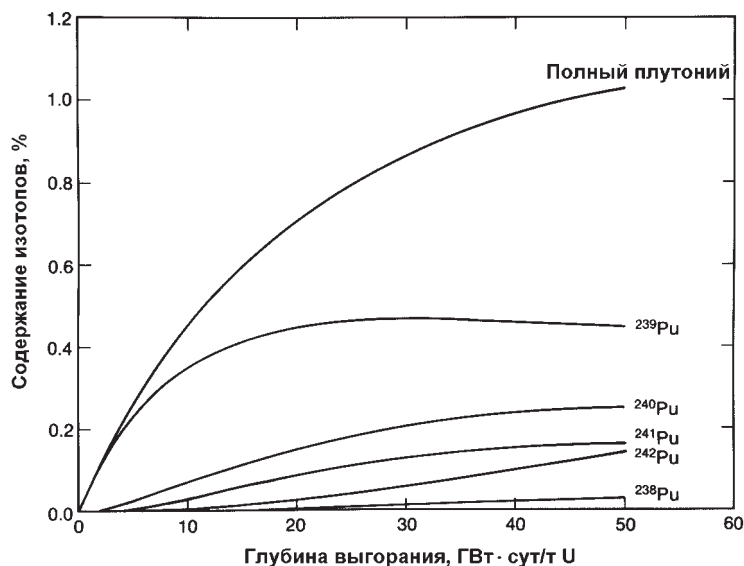


Рис. 18.22. Зависимость относительной концентрации изотопов плутония (выраженной в весовых процентах от исходного урана) от глубины выгорания. Данные были получены путем расчетов с помощью программы EPRI-CINDER [5]

Источник размещается рядом с облученным топливом, где он и образует сигнал вынужденного деления, пропорциональный количеству делящегося материала. Типичная интенсивность нейтронных источников должна быть порядка от 10^8 до 10^9 нейтрон/с для индуцирования сигнала деления, сравнимого по величине с выходом собственных нейтронов. Практически системы активной нейтронной подсветки не могут определять разницу между ураном и плутонием. Сигнал вынужденного деления пропорционален полной массе делящихся изотопов ^{235}U , ^{239}Pu и ^{241}Pu .

Комбинированная система активного и пассивного нейтронного анализа разработана Г. Шульцем, Х. Уэрзом и другими [19] с помощью источника на базе ^{252}Cf . Система может определить выгорание топлива и исходное содержание урана. Содержание плутония может быть получено косвенным путем из соотношения изотопов.

На нескольких установках для измерений облученного топлива применялась активационная методика по запаздывающим нейтронам. На перерабатывающей установке в Даунри (Великобритания) применялся генератор нейтронов с энергией 14 МэВ для анализа контейнеров с "шелухой" [34]. Недавно эта система была преобразована в "калифорниевый шаффлер" для подсветки нейтронами [35]. Мощная система на базе "калифорниевого шаффлера" была также разработана для анализа высокообогащенного облученного урана [36]. Однако в настоящее время в эксплуатации не существует активных нейтронных систем для измерения тепловыделяющих сборок энергетических реакторов. Это произошло потому, что для активных нейтронных систем необходим ускоритель, нейтронный генератор или большой, хорошо экранированный изотопный источник, которые ограничивают использование этих систем стационарными установками в научно-исследовательских лабораториях или на перерабатывающих установках. Состояние активных нейтронных методов и результаты измерений обобщены в работах [4 и 11].

Таблица 18.6 – Методики неразрушающего анализа для контроля облученных тепловыделяющих сборок

	Методика измерений		Аппаратура
	гамма-излучение	нейтронное излучение	
Специальный уровень проверки			Визуальный контроль
Физические характеристики			Прибор наблюдения черенковского свечения
Индикация глубины выгорания	Черенковское излучение		Ионизационные камеры
	Наличие гамма-излучения		Термолюминесцентные детекторы
			Сцинтилляторы
		Наличие нейтронного излучения	Камеры деления
			Детекторы на базе ^{10}Be
Физическая целостность тепловыделяющей сборки	Черенковское излучение		Прибор наблюдения черенковского свечения
	Относительные интенсивности высокоэнергетических гамма-квантов		Германиевый детектор
			Детектор $\text{Ve}(\gamma, n)$
		Относительные значения интенсивностей испускания нейтронов	Камеры деления
			Детекторы на базе ^{10}Be
Наличие продуктов деления и актинидов	Качественная идентификация определенных линий спектра гамма-излучения		Германиевый детектор
			Детектор $\text{Ve}(\gamma, n)$
		Относительные значения интенсивностей испускания нейтронов	Камеры деления
			Детекторы на базе ^{10}Be

Окончание таблицы 18.6

Специальный уровень проверки	Методика измерений		Аппаратура
	гамма-излучение	нейтронное излучение	
Относительные концентрации продуктов деления и актинидов	Количественные измерения ^{137}Cs , $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ и $^{154}\text{Eu}/^{137}\text{Cs}$; корреляция с заявленной оператором информацией	Германиевые детекторы	
Непосредственное измерение содержания делящегося материала	Косвенно путем корреляции результатов измерений НРА и разрушающего анализа	Количественные измерения интенсивностей испускания нейтронов; корреляция с заявленной оператором информацией	Камеры деления Детекторы на базе ^{10}Be
		Количественные измерения нейтронов вынужденных делений в ядерном материале	Германиевые детекторы Нейтронный источник Камеры деления Детекторы на базе ^{10}Be

18.7 ОБЗОР МЕТОДОВ НЕРАЗРУШАЮЩЕГО АНАЛИЗА ДЛЯ КОНТРОЛЯ ОБЛУЧЕННОГО ТОПЛИВА

В табл. 18.6 обобщены методики неразрушающего анализа, применяемые для контроля облученных тепловыделяющих сборок. В зависимости от необходимого уровня контроля инспектор может использовать одну или несколько методик гамма- и нейтронных измерений, рассмотренных в этой главе. Вообще наиболее эффективный контроль может быть осуществлен сочетанием гамма- и нейтронных измерений.

ЛИТЕРАТУРА

1. *Nucleonics Week*, January 2, 1986.
2. Duderstadt and Hamilton, "*Nuclear Reactor Analysis*" (John Wiley and Sons, Inc., New York, 1976).
3. A.V. Nero, *A Guidebook to Nuclear reactors* (University of California Press, Berkeley, California, 1979).
4. T.D. Reilly, "The Measurement of Leached Hulls," Los Alamos Scientific Laboratory report LA-7784-MS (1979).
5. G.E. Bosler, J.R. Phillips, W.B. Wilson, R.J. LaBauve, and T.R. England, "Production of Actinide Isotopes In Simulated PWR. Fuel and Their Influence on Inherent Neutron Emission," Los Alamos National Laboratory report LA-9343 (1982).
6. T.R. England, W.B. Wilson, and M.G. Stamatelatos, "Fission Product Data for Thermal Reactors, Part 1: A Data Set for EPRI-CINDER Using ENDF/B-IV," Electric Power Research Institute report EPRI NP/356, Part 1, and Los Alamos Scientific Laboratory report EA-6745-MS (1976).
7. T.R. England, W.B. Wilson, and M.G. Stamatelatos, "Fission Product Data for Thermal Reactors, Part 2: Users Manual for EPRI-CINDER Code and Data," Electric Power Research Institute report EPRI NP/356, Part 2, and Los Alamos Scientific Laboratory report LA-6746-MS (1976).
8. D. Cobb, J. Phillips, G. Bosler, G. Eccleston, J. Halbig, C. Hatcher, and S.T. Hsue, "Nondestructive Verification and Assay Systems for Spent Fuels," Los Alamos National Laboratory report LA-9041, Vol. 1 (April 1982).
9. E.J. Dowdy, N. Nicholson, and J.T. Caldwell, "Irradiated Fuel Monitoring by Cerenkov Glow Intensity Measurements," Los Alamos Scientific Laboratory report LA-7838-MS(1979).
10. N. Nicholson and E.J. Dowdy, "Irradiated Fuel Examination Using the Cerenkov Technique," Los Alamos National Laboratory report LA-8767-MS (1981).
11. S.T. Hsue, T.W. Crane, W.L. Talbert, and J.C. Lee, "Nondestructive Assay Methods for Irradiated Nuclear Fuels," Los Alamos Scientific Laboratory report LA-6923(1978).
12. J.R. Phillips, G.E. Bosler, J.K. Halbig, S.F. Klosterbuer, and H.O. Menlove, "Non-destructive Verification with Minimal Movement of Irradiated Light-Water Reactor Fuel Assemblies," Los Alamos National Laboratory report LA-9438-MS (1982).

13. P.M. Rinard, "A Spent-Fuel Cooling Curve for Safeguard Applications of Gross-Gamma Measurements," Los Alamos National Laboratory report LA-9757-MS (1983).
14. Advisory Group Meeting on the Nondestructive Analysis of Irradiated Power Reactor Fuel, International Atomic Energy Agency report AG-241 (October 29- November 2, 1979).
15. J.R. Phillips, B.K. Barnes, and T.R. Bement, "Correlation of the Cesium-134/Cesium-137 Ratio to Fast Reactor Burnup," *Nuclear Technology* 46, 21(1979).
16. J.R. Phillips, J.K. Halbig, D.M. Lee, S.E. Beach, T.R. Bement, E. Dermendjiev, C.R. Hatcher, K. Kaieda, and E.G. Medina, "Application of Nondestructive Gamma-Ray and Neutron Techniques for the Safeguarding of Irradiated Fuel Materials," Los Alamos Scientific Laboratory report LA-8212 (1980).
17. S.T. Hsue, C.R. Hatcher, and K. Kaieda, "Cooling Time Determination of Spent Fuel," *Nuclear Materials Management* 8, 356-367 (Fall 1979).
18. A.J.G. Ramalho and W.E. Payne, "Spent Fuel Measurements Using High-Resolution Gamma Systems," *Nuclear Materials Management* 8, 76 (1979).
19. G. Schulze, H. Wuerz, L. Koch, and R. Wellum, "Neutron Assay Plus Isotopic Correlations: A Method for Determining Pu and Burnup In Spent LWR Fuel Assemblies," *Proc. Second Annual Symposium on Safeguards and Nuclear Materials Management*, Edinburgh, Scotland, March 26-28, 1980 (European Safeguards Research and Development Association, Brussels, Belgium, 1980), pp.396-403.
20. J.R. Phillips, G.E. Bosler, J.K. Halbig, S.F. Klosterbuer, D.M. Lee, and H.O. Menlove, "Neutron Measurement Techniques for the Nondestructive Analysis of Irradiated Fuel Assemblies," Los Alamos National Laboratory report LA-9002-MS (1981).
21. P. Fedotov, N.M. Kazarinov, and A.A. Voronkov, "The Use of Neutron Scanning Method for Analysis of Spent VVFR Assemblies In Safeguarding Systems," presented at the IAEA Advisory Group Meeting on Methods and Techniques for NDA Safeguards Measurements of Power Reactor Spent Fuel, Vienna, October 28-November 2, 1979.
22. S.T. Hsue, J. Stewart, K. Kaieda, J. Halbig, J. Phillips, D. Lee, and C. Hatcher. "Passive Neutron Assay of Irradiated Nuclear Fuels," Los Alamos Scientific Laboratory report LA-7645-MS (1979).
23. J.R. Phillips and G.E. Bosler, "Calculated Response Contribution of Gamma Rays Emitted from Fuel Pins in an Irradiated PWR Fuel Assembly," Los Alamos National Laboratory report LA-9837 (1983).
24. R.J.S. Harry, J.K. Aaldijk, and J.P. Braak, "Gamma Spectrometric Determination of Isotopic Composition Without Use of Standards," In Proceedings of the International Symposium on Nuclear Materials Safeguards, Vienna, October 20-24, 1975 (IAEA-SM-201/68).
25. T.N. Dragnev, "Intrinsic Self-Calibration of Nondestructive Gamma Spectrometric Measurements (Determination of U, Pu, and Am-241 Isotopic Ratios)," International Atomic Energy Agency report IAEA/STR-60 (1976).

26. T.R. Bement and J.R. Phillips, "Evaluation of Relative Detection Efficiency on Sets of Irradiated Fuel Elements," Proc. of the 1980 DOE Statistical Symposium, October 29-31, 1980(CONF-801045).
27. T. Suzuki, H. Tsuruto, and S. Matsura, "Non-Destructive Gamma-Ray Spectrometry and Analysis on Spent Fuel Assemblies of the JPDR-I Core," Japan Atomic Energy Research Institute report JAERI-memo 8164 (1979).
28. C.E. Moss and D.M. Lee, "Gross Gamma-Ray Measurements of Light-Water Reactor Spent-Fuel Assemblies in Underwater Storage Arrays," Los Alamos Scientific Laboratory report LA-8447 (1980).
29. J.R. Phillips, G.E. Bosler, J.K. Halbig, S.F. Klosterbuer, H.O. Menlove, and P.M. Rinard, "Experience Using a Spent-Fuel Measurement System," presented at the 24th Annual Meeting of the Institute of Nuclear Materials management, Vail, Colorado, July 10-13, 1983.
30. R.N. Olsen, Ed., "Instructions for the Use of the ION-1 and the Fork Detector," International Atomic Agency report IMI No. 42 (November 1984).
31. P.M. Rinard, "Neutron measurements in Borated Water for PWR Fuel Inspections," Los Alamos National Laboratory report LA-10068-MS (1984).
32. P.M. Rinard and G.E. Bosler, "BWR Spent-Fuel Measurements with the ION-1/Fork Detector and Calorimeter," Los Alamos National Laboratory report LA-10758-MS (1986).
33. S. Klosterbuer and J. Halbig, "Portable Spent-Fuel Gamma-Ray and Neutron Detector Electronics User Manual," Los Alamos National Laboratory report LA-8707-M (1983).
34. B. McDonald, G. Fox, and W. Bremner, "Nondestructive Measurements of Plutonium and Uranium in Process Wastes and Residues," in *Safeguarding Nuclear Materials*, Proc. Symp., Vienna, 1975 (IAEA Pub 408, Vol. II, p.589, 1976).
35. G. Eccleston, H. Menlove, T. Van Lyssel, G. Walton, D.C. Garcia, and G. Ortiz, "Dounreay Shuffler," in "Safeguards and Security Progress Report, January-December 1983," Los Alamos National Laboratory report LA-10170 (September 1984), p.59.
36. G.W. Eccleston, H.O. Menlove, and M.W. Echo, "A Measurement Technique for High Enrichment Spent Fuel Assemblies and Waste Solids," *Nuclear Materials Management* 8, 344-355 (1979).

Глава 19

Радиационные мониторы контроля периметра

*Пол И. Фелау
(Переводчик А.Н. Григорьев)*

19.1 ВВЕДЕНИЕ

Радиационные мониторы контроля периметра размещаются по периферии контролируемых зон, содержащих ядерные материалы, и зон с радиоактивным загрязнением местности для обнаружения случайного или скрытого перемещения ядерных и/или радиоактивных материалов. В настоящее время применяются два типа мониторов контроля периметра: мониторы [радиоактивного] загрязнения и мониторы ядерных материалов. Мониторы загрязнения обнаруживают загрязнение на теле человека или поверхности объекта. В этих случаях регистрируется неэкранированное излучение с большой площади. Мониторы ядерных материалов должны обнаруживать небольшие количества ядерных материалов, возможно экранированных, которые могут быть спрятаны, например, в портфеле. В этом случае небольшие габариты источника и присутствие поглотителей снижают интенсивность излучения. В этой главе обсуждаются оба примера практического применения мониторов контроля периметра, но основное внимание уделяется мониторам ядерных материалов.

Когда возникла потребность в мониторах для обнаружения ядерных материалов, уже имелись ручные мониторы загрязнения, поскольку задача обнаружения радиоактивного загрязнения предшествовала появлению задачи сохранности и безопасности ядерных материалов. Однако из-за того, что персонал охраны при их применении должен был следить за показаниями аналогового измерительного прибора, его внимание отвлекалось от непосредственного наблюдения за объектом. Для преодоления этой проблемы были разработаны автоматические портативные [1] и ручные мониторы [2]. Они обеспечивают звуковые и световые сигналы тревоги, которые позволяют оператору полностью посвящать свое основное внимание задачам наблюдения за объектом. В последнее время требование к работодателям обеспечить служащих первоклассным оборудованием по контролю загрязнения подтолкнуло разработку автоматических высокочувствительных мониторов радиоактивного загрязнения [3]. Эти приборы, также как и современные мониторы ядерных материалов, проектируются с учетом требований высокой чувствительности, надежности и простоты обслуживания.

Мониторы для обнаружения перемещения ядерных материалов должны удовлетворять требованиям Министерства энергетики США [4] и Комиссии США по ядерному регулированию [5] по осмотру каждого человека, упаковки или транспортного средства, покидающих зону доступа к ядерным материалам. Мониторы контроля радиационного загрязнения должны удовлетворять требо-

ваниям стандартов по радиационной безопасности для контроля лиц, покидающих зону с радиоактивным загрязнением. В обоих случаях визуальный или ручной осмотр могут оказаться неэффективными, в то время как радиационные мониторы реагируют на излучение, испускаемое ядерными и радиоактивными материалами, и могут обеспечивать ненавязчивый, чувствительный и эффективный контроль. Мониторы должны обеспечить своевременное предупреждение о радиоактивном загрязнении или перемещении ядерного материала до того, как контролируемый материал может покинуть зону доступа.

Примерами мониторов обнаружения перемещения ядерных материалов являются портальный монитор (показан на рис. 19.1 с детекторами, расположенными рядом с проходящим пешеходом) и ручной (показан на рис. 19.2 в момент персонального досмотра пешехода). Ручные мониторы имеют разнообразное применение, в том числе контроль загрязнения, но их эффективность зависит от оператора, проводящего досмотр. В то же время портальные мониторы должны быть полностью автоматизированы.

В новых конструкциях мониторов детекторы размещаются внутри арки (см. рис. 19.3), где досматриваемые лица должны находиться рядом с радиационными детекторами в течение длительного времени. Более длительный период контроля и близость детекторов к досматриваемому лицу повышают чувствительность регистрации; эти принципы применяются для контроля как пешеходов, так и автотранспорта.



Рис. 19.1. Автоматический портальный монитор ядерных материалов с пластмассовыми сцинтилляторами большой площади для контроля пешеходов



Рис. 19.2. Мониторинг ручными приборами весьма эффективен, если оператор имеет хорошую подготовку и основание для досмотра

19.2 ВЛИЯНИЕ РАДИАЦИОННОГО ФОНА

На радиационные мониторы оказывает влияние радиационный фон и изменение его интенсивности во времени. Кроме того, интенсивность радиационного фона влияет на эффективность контроля. Порог обнаружения должен устанавливаться выше значения интенсивности фона, чтобы избежать ложных срабатываний из-за статистического разброса отсчетов (одна из причин ложной тревоги). Необходимое значение порога повышается пропорционально увеличению интенсивности фона, приводя к уменьшению чувствительности контроля. В момент проведения измерения монитором контролируемого объекта быстрые изменения интенсивности фона, которые могут быть вызваны изменениями естественного радиационного фона, перемещениями радиоактивных материалов или оборудованием, генерирующим излучение, могут быть ошибочно приняты за сигналы от ядерных материалов или вызывать другой тип ложных сигналов. Примером изменения естественного радиационного фона, ведущего к быстрому изменению интенсивности, является распад ^{226}Ra в почве. Его газообразный дочерний изотоп ^{222}Rn может покинуть почву, распадаясь в атмосфере. Эти дочерние продукты, которые сами являются радиоактивными, могут оседать на частицах пыли, которые образуют центры конденсации дождевых капель. Когда такие дождевые капли падают на землю, они временно увеличивают интенсивность фона (см. рис. 19.4).



Рис.19.3. Этот чувствительный монитор загрязнения проводит измерения с каждой стороны тела объекта раздельно. Фото предоставлено фирмой Eberline Instrument Corp., Санта-Фе, штат Нью-Мексико

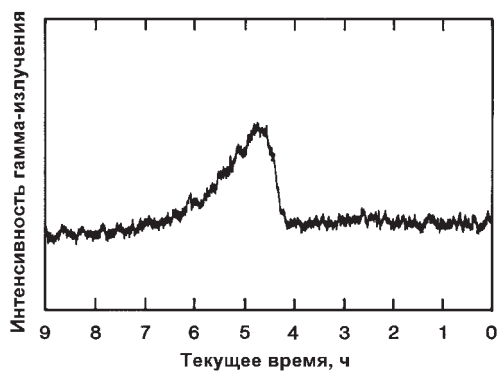


Рис.19.4. Запись интенсивности фона, показывающая увеличение скорости счета монитора дорожного покрытия во время интенсивных осадков

19.3 ХАРАКТЕРИСТИКИ СИГНАЛОВ СИСТЕМ КОНТРОЛЯ ЗА ПЕРЕМЕЩЕНИЕМ ЯДЕРНЫХ МАТЕРИАЛОВ И РАДИОАКТИВНОГО ЗАГРЯЗНЕНИЯ

19.3.1 Источники излучения

Как описано в главе 1, ядерные материалы могут быть обнаружены благодаря их спонтанному излучению. Каждое из этих излучений: альфа, бета, гамма, рентгеновское и нейтронное обладает различной проникающей способностью. Проникающая способность альфа-излучения мала и оно легко останавливается несколькими сантиметрами воздуха. Кроме случая, когда детекторы загрязнения почти касаются излучателя, альфа-излучение вносит небольшой вклад в сигнал радиационного монитора. Более проникающие виды излучения, которые легко проходят через воздух, могут быть зарегистрированы на некотором расстоянии. Однако корпус детектора и упаковка ядерного материала могут экранировать все виды излучения кроме гамма-квантов и нейтронов. Существует одно принципиальное различие между сигналами от радиоактивных загрязнений и ядерных материалов: загрязнение обычно «лежит» на поверхности, где его излучение легко обнаруживается, а мониторы ядерных материалов должны реагировать на проникающее излучение материала, заключенного в оболочку. Следовательно, мониторы загрязнения часто регистрируют несколько видов излучений, а мониторы ядерных материалов регистрируют в основном гамма-излучение и нейтроны. Мониторы ядерных материалов, рассмотренные далее в этой главе, главным образом регистрируют гамма-излучение, но также обладают и некоторой чувствительностью к нейтронам. На рис. 19.5 (а, б) проиллюстрировано поглощение трех видов излучения различными материалами.

Внутреннее самопоглощение в источнике излучения также может значительно изменять регистрируемые сигналы. Например, ядерные материалы экранируют свое собственное гамма-излучение; степень самопоглощения зависит от физической формы материала. Рис. 19.6 иллюстрирует самопоглощение для различных форм и габаритов высокообогащенного урана. Тонкие урансодержащие материалы, такие как порошки и фольга, излучают больше всего; в то же время, такие более плотные формы, как сферы и цилиндры, поглощают большую часть своего излучения. Излучение цилиндров (см. рис. 19.6) пропорционально площади поверхности, которая увеличивается пропорционально массе в степени $2/3$, что показано прямой линией на графике (построенном в логарифмическом масштабе — прим. пер.).

19.3.2 Сигналы, изменяющиеся во времени

При контроле ядерных материалов или загрязнения сигналы монитора обычно присутствуют только в течение короткого интервала времени. Если объект подвижен, сигнал от ядерного материала будет изменяться в течение процесса контроля (мониторинга), так как объект перемещается по отношению к детектору. Рис. 19.7 иллюстрирует результирующий сигнал монитора, когда пешеход проходит через него, неся с собой ядерный материал. Интеграл переменного во времени сигнала составляет приблизительно 60 % от сигнала неподвижного объекта. Хорошая конструкция монитора гарантирует, что время измерения соответствует,

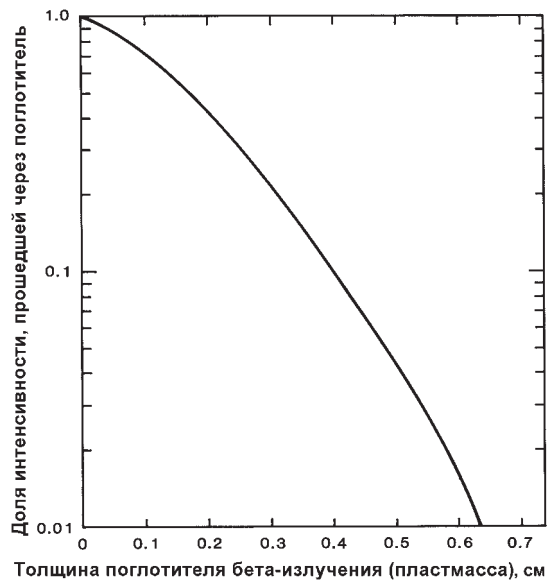


Рис.19.5 (а). Непрерывный спектр бета-излучения (максимальная энергия 1,9 МэВ) легко поглощается несколькими сантиметрами пластмассы

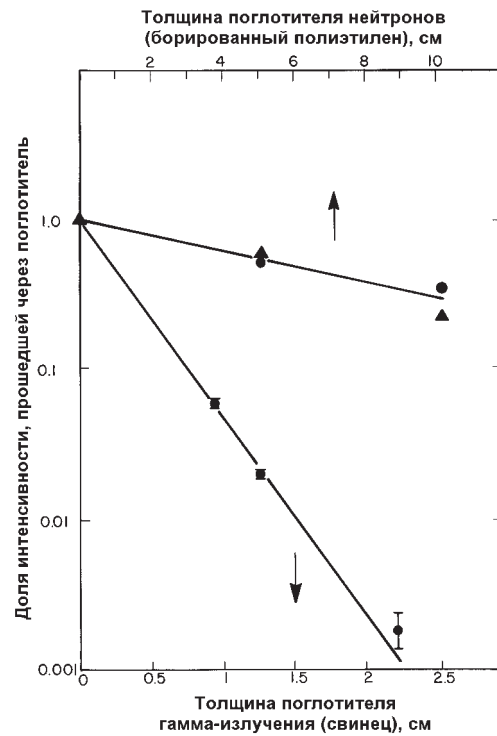


Рис.19.5 (б). Гамма-излучение плутония поглощается малой толщиной свинца, но большая толщина борированного полиэтилена значительно меньше воздействует на его нейтроны

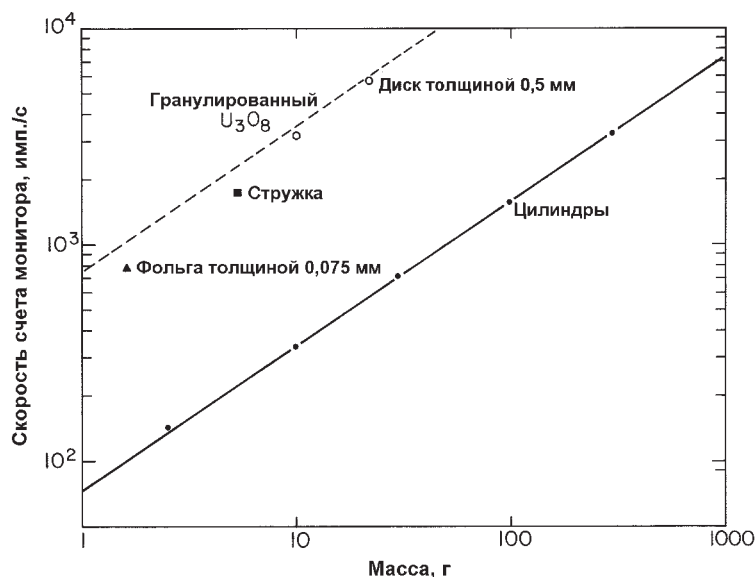


Рис. 19.6. Форма высокообогащенного урана влияет на самопоглощение гамма-излучения. Интенсивность излучения изменяется от площади поверхности больше, чем от массы

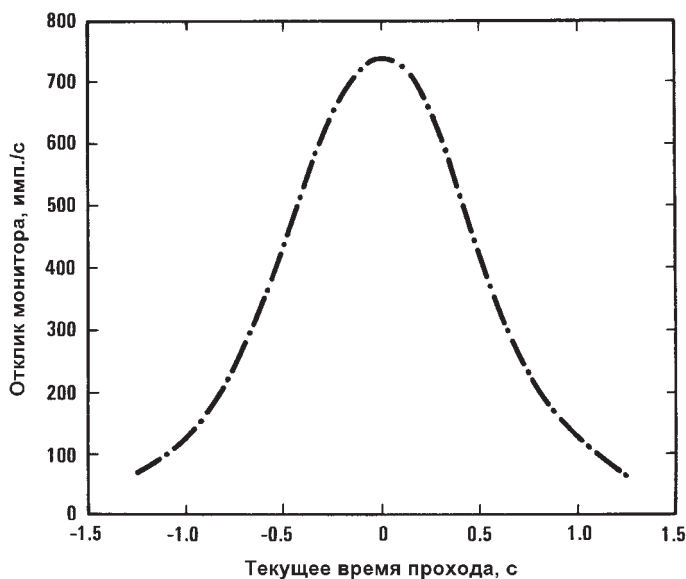


Рис. 19.7. При проходе через порталный монитор пешехода, несущего ядерный материал, генерируется сигнал колоколообразной формы

насколько это возможно, максимальному уровню сигнала. Подходы к достижению этой оптимальной ситуации рассматриваются в разделе 19.4.

Дополнительным эффектом, снижающим сигнал монитора, является уменьшение интенсивности фона, вызываемое самим объектом. Радиационный фон окружающей монитор среды может частично поглощаться человеком или транспортным средством, находящимся в мониторе. Для пешеходов снижение интенсивности может быть всего 1,5 %, но для транспортных средств составит намного большую величину. Рис. 19.8 иллюстрирует снижение, вызываемое присутстви-

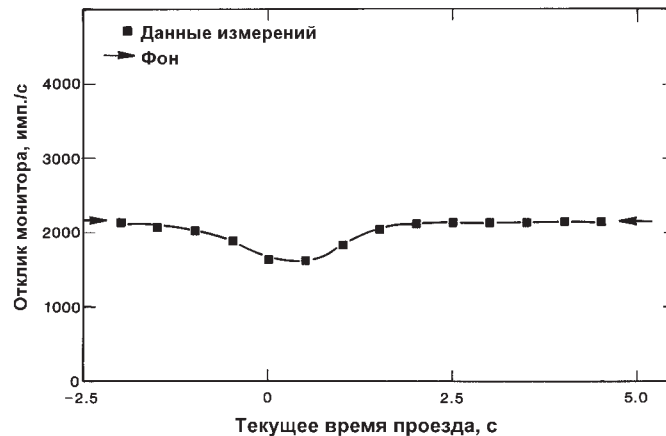


Рис. 19.8. Сигнал монитора в форме перевернутого колокола в результате поглощения радиационного фона при проезде транспорта

ем грузовика в мониторе автотранспорта. Диапазон снижения интенсивности для различных габаритов транспортных средств находится в пределах 10-25 %. Так как порог обнаружения монитора является величиной постоянной, то для обнаружения излучения при находящемся в мониторе объекте требуется сигнал намного больший, чем для пустого монитора.

19.4 АНАЛИЗ СИГНАЛОВ

19.4.1 Регистрация излучения

Анализ сигналов в радиационных мониторах применяется для того, чтобы решить, является ли измеренный сигнал только фоновым или на фоновый сигнал накладывается дополнительный сигнал от радиоактивного излучения контролируемого ядерного или радиоактивного материала. К сожалению, простому сравнению мешают статистические изменения результатов измерений фона и непосредственно мониторинга. Хотя уровень ожидаемого фона может быть достаточно точно определен путем измерения в течение длительного времени, каждое измерение при мониторинге является вынужденно коротким по времени и недостаточно точным. Если уровень фона имеет ожидаемую величину V , то значения отдельных измерений будут находиться в диапазоне нескольких среднеквадратических отклонений выше и ниже V . Одно среднеквадратическое отклонение в этом примере составляет квадратный корень из величины V . Чтобы исключить ложное срабатывание, сравнение результатов измерений при мониторинге должно допускать статистические изменения, в несколько раз превышающие квадратный корень из V . Результат каждого измерения при мониторинге обычно сравнивается с порогом обнаружения, определенным по уравнению (19.1). Сигнал обнаружения вырабатывается, когда результат измерения равен или превышает порог обнаружения M , определяемый по формуле

$$M = V + N\sqrt{V}, \quad (19.1)$$

где N — приращение сигнала обнаружения (число стандартных отклонений, обычно принимается равным 3 или 4). Сигнал обнаружения истинный, когда он является результатом регистрации излучения контролируемого ядерного и/или радиоактивного материала, и — ложным, когда он обусловлен статистическими отклонениями или изменениями фона.

19.4.2 Аналоговые методы регистрации

Простой и надежный метод выработки решения при мониторинге — это аналоговый метод [6], который сравнивает интенсивности излучения, измеренные при мониторинге, с интенсивностями фонового излучения с помощью двух RC-цепочек, имеющих разные постоянные времени (рис. 19.9). Цепь с большой постоянной времени запоминает интенсивность фонового излучения в течение периода времени около 20 с, в то время как цепь мониторинга имеет короткую постоянную времени 0,4 с. Компаратор градуируется подачей на его вход аналогового сигнала от измерителя скорости счета до тех пор, пока не будут достигнуты выбранная чувствительность и интенсивность сигналов ложного срабатывания. Отрегулированная один раз надлежащим образом схема функционирует длительное время и готова контролировать сигналы, когда бы они не появились. Недостатком аналоговых схем является процедура ручной регулировки: точная настройка может потребовать большого количества времени. С другой стороны, цифровые логические схемы не нуждаются во многих регулировках.

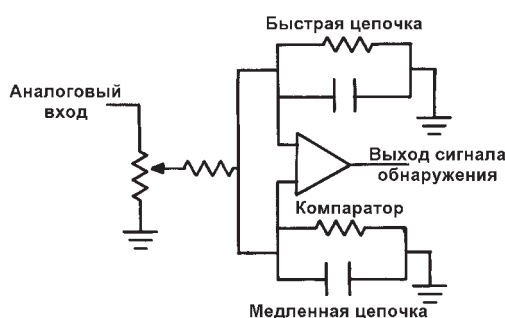


Рис. 19.9. Аналоговая схема сравнения скорости счета при мониторинге со скоростью счета фона

19.4.3 Цифровые методы регистрации

Сигнал обнаружения может быть получен как с помощью цифровых схем, так и с помощью микропроцессоров. Уравнение (19.1) может быть реализовано, например, сравнением результата измерения при мониторинге в течение 0,4 с, содержащегося в цифровом регистре, с находящимся в памяти порогом обнаружения, полученным из предшествующего измерения фона. Находящееся в памяти значение порога обнаружения может быть получено из результата ранее сделанного 20-секундного измерения фона, деленного на 50 для получения величины V (приведенной к длительности рабочего измерения 0,4 с — прим. ред.), плюс добавленное кратное число квадратных корней из V . В этом случае сравнение является безразмерным и не требует никакой градуировки. Этот одноинтервальный метод имеет один недостаток: он не является непрерывным, поэтому интервал измерения может не совпасть с наиболее интенсивной частью сигнала (см. рис. 19.7). Однако цифровые логические схемы легко доработать, чтобы преодо-

леть такие недостатки. Усовершенствования, описанные ниже, включают метод скользящего среднего, метод последовательных шагов и последовательную проверку гипотез.

Цифровой метод, который хорошо реализуется в мониторах в режиме прохода, использует при мониторинге скользящее среднее результатов измерений. Применяются короткие периоды измерений (например, 0,2 с), и результаты четырех или более периодов измерений суммируются и сравниваются с порогом обнаружения (порог обнаружения нормируется в соответствии с количеством периодов измерений — прим. ред.). После первой группы четырех или более периодов добавляется новый результат измерений, а самый старый вычитается из суммы. Каждая новая сумма сравнивается с порогом обнаружения. Затем измерения продолжаются до тех пор, пока не произойдет срабатывание или не освободится монитор. Так как мониторинг непрерывен и принимается много решений, порог обнаружения должен быть выше, чем для одноинтервального метода (описанного в предыдущем параграфе), чтобы достигнуть той же самой вероятности обнаружения. Однако метод скользящего среднего имеет более высокую чувствительность, потому что он измеряет самую интенсивную часть сигнала.

Простой метод последовательных шагов [7] сокращает период мониторинга. Во время измерения требуется, чтобы объект контроля подождал, пока не будет завершено измерение. При удлинении периода мониторинга достигается более высокая чувствительность регистрации без увеличения частоты ложных срабатываний. Время ожидания может быть сокращено путем деления периода измерения на шаги, на каждом из которых вырабатывается промежуточное решение. Полный период требуется только тогда, когда все промежуточные решения

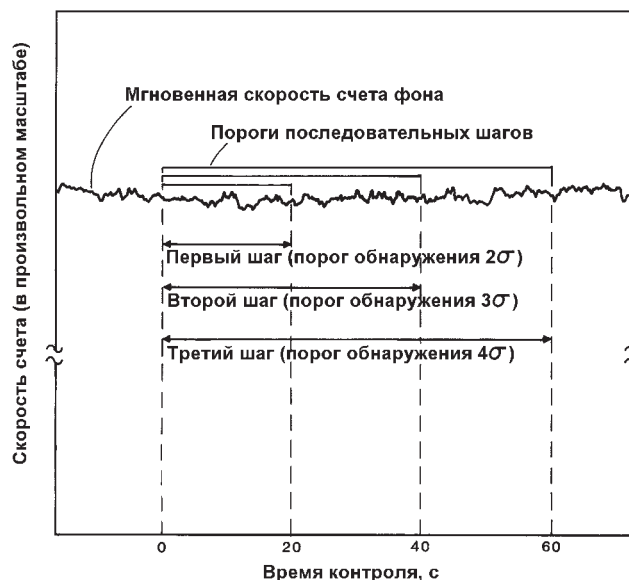


Рис. 19.10. Метод последовательных шагов вырабатывает промежуточные решения для более низких порогов обнаружения, которые сохраняют чувствительность ценой более частых ложных срабатываний. Последствие случайного ложного срабатывания заключается в ожидании еще одного дополнительного шага. Для порогов, показанных на этом рисунке, среднее время ожидания снижается на две трети

дают сигнал обнаружения. Другими словами, контроль завершается после первого шага, который не выдает сигнала обнаружения. Каждый промежуточный порог обнаружения имеет ту же самую чувствительность регистрации, что и при использовании полного периода измерения, но имеет более высокую вероятность частоты ложных срабатываний. Рис. 19.10 иллюстрирует методику; все транспортные средства без радиоактивных материалов, кроме около 2,3 %, будут проезжать после первого интервала измерений, который имеет порог обнаружения, равный двум стандартным отклонениям. Задержанные транспортные средства измеряются в течение дополнительных периодов измерений, результаты складываются с первым результатом и повторно анализируются на более высоких порогах обнаружения. Если сигналы обнаружения повторяются, проводится заключительное измерение и принимается окончательное решение, как в случае, если бы никаких промежуточных решений не принималось.

В работе, выполненной Уолдом [8] в 40-е годы, была разработана последовательная проверка гипотез для уменьшения времени проведения контроля качества на производстве. Последовательная проверка гипотез также сокращает время проведения измерений и при радиационном мониторинге [9]. Этот метод использует последовательность коротких измерений, за каждым из которых следует проверка гипотезы. Результатом каждой проверки является одно из трех решений: накопленные измерения представляют фон, измерения вырабатывают сигнал обнаружения или измерения должны продолжаться до тех пор, пока не будет выработано окончательное решение. Если одно из первых двух возможных решений не может быть достигнуто достаточно быстро, то заключительное решение принимается на основании какого-либо другого метода.

При обсуждении практического применения этого метода в работе [9] дается информация о том, что средний период измерения составляет 22 % от требуемого периода измерения при одноинтервальном методе без увеличения частоты ложных срабатываний. Мониторинг также проходит быстро при наличии сигнала о присутствии ядерного материала. Если интенсивность излучения достаточно близка к порогу обнаружения, в этом случае последовательная проверка гипотез потребует столько же времени, сколько при одноинтервальном методе.

19.4.4 Долговременный мониторинг

Долговременный мониторинг является новым подходом, который позволяет достигнуть высокой чувствительности благодаря повторяющимся измерениям и применяется совместно, но независимо, с другими стандартными методиками [10]. Этот метод может обнаруживать при повторном контроле случаи загрязнения или перемещения ядерного материала в количествах, слишком малых для обнаружения при обычном мониторинге. Одним из практических применений этого метода является суммирование результатов мониторинга пешеходов, входящих в зону, и сравнение этой суммы с суммой результатов контроля пешеходов, покинувших зону. Любое отличие между двумя суммами может означать загрязнение или несанкционированное перемещение ядерного материала.

Метод долговременного мониторинга рассчитывает результирующий сигнал во время измерения путем вычитания из каждого измерения среднего значения фона, определенного до и после измерения. Хотя отдельные измерения не являются точными, средний результирующий сигнал для сотен проходов вполне то-

чен. Фактически, этот метод обеспечивает самое точное измерение среднего ослабления радиационного фона объектом контроля.

Кроме того, что данный метод может усреднять результаты мониторинга для большого количества людей, этому методу может потребоваться идентификация каждого объекта контроля, так как данные о каждом лице могут быть зарегистрированы. Затем анализ долговременных средних значений измерений при входе и выходе отдельного лица может идентифицировать случаи повторных загрязнений или перемещений небольших количеств ядерного материала. Метод долговременного мониторинга в десять раз более чувствителен, чем другие методы, в случаях, когда каждый выход человека вызывает сигнал радиационного загрязнения или наличия ядерного материала, а при входе этого не происходит.

19.5 ДЕТЕКТОРЫ ИЗЛУЧЕНИЯ

Мониторы контроля периметра используют различные виды детекторов излучения в зависимости от того, спроектированы ли они для обнаружения загрязнений или контроля наличия ядерных материалов. Для обнаружения излучения при загрязнении наиболее подходящими являются пропорциональные газоразрядные счетчики, а для обнаружения проникающего излучения от ядерного материала наиболее подходят сцинтилляторы. Основные свойства пропорциональных газоразрядных счетчиков и неорганических сцинтилляторов рассматриваются в главе 3. Органические сцинтилляторы, которые широко применяются при мониторинге ядерных материалов, рассматриваются в этом разделе наряду с пропорциональными проточными газоразрядными счетчиками для контроля загрязнения периметра. Эти недорогие детекторы большой площади хорошо адаптируются к требованиям мониторинга периметра.

19.5.1 Пластмассовые сцинтилляторы

Пластмассовые сцинтилляционные детекторы — это твердотельные органические сцинтилляторы, которые содержат флюоресцирующие компоненты, растворенные в кристаллизованном полимерном растворе [11]. Эти материалы имеют малую плотность и атомный номер, поэтому у них отсутствует сильное фотоэлектрическое поглощение. Они регистрируют гамма-кванты с помощью комптоновских электронов, а нейтроны — с помощью протонов отдачи. Данные детекторы не выделяют пики полного поглощения, а регистрируют весь спектр гамма-излучения от комптоновского края до нулевой энергии. Хотя органические сцинтилляторы являются спектрометрами с ограниченной энергией и имеют низкую собственную эффективность регистрации, они представляют собой отличные дешевые радиационные счетчики с большими площадями. Их низкая стоимость обусловлена применением недорогих материалов и простого корпуса, тогда как выращивание кристаллов NaI(Tl) является дорогим процессом и они нуждаются в защите от влаги и перепада температур.

Большие размеры пластмассовых сцинтилляторов обеспечивают хорошую полную эффективность регистрации даже несмотря на то, что их собственная эффективность мала. Полная эффективность — это произведение собственной эффективности детектора и доли излученных протонов, которые регистрируются. Последний множитель зависит от размеров детектора. Один большой детектор

также обеспечивает более равномерный мониторинг, чем батарея из нескольких небольших детекторов.

Пластмассовые сцинтилляционные детекторы имеют и некоторые недостатки: они производят только около 10 % света по сравнению с NaI(Tl)-детекторами и их большой размер делает затруднительным равномерный сбор света. Равномерный сбор света является важным для того, чтобы свести к минимуму разброс амплитуд импульсов, появляющийся при детектировании излучения, проходящего в различных частях детектора. В работе [12] рассматриваются методы получения полного внутреннего отражения сцинтилляционного света и обеспечения однородности реакции большого детектора. Малое количество генерируемого света компенсируется применением многокатодных фотоумножителей на базе двух щелочных химических элементов, которые обеспечивают хорошее усиление сигнала при малых темновом токе и шумах фотокатода.

Низкий уровень шумов фотоумножителя важен для органических сцинтилляторов, так как комптоновский спектр простирается вниз до нулевой амплитуды. Шумы устанавливают практическое ограничение на амплитуду импульсов, которые могут быть зарегистрированы. Это смещение ограничивает собственную эффективность регистрации и влияет на эффективность регистрации в широком диапазоне энергии случайного гамма-излучения, как показано на рис. 19.11. Фотокатоды на базе двух щелочных элементов могут работать при комнатной температуре на уровне смещения 0,045 В.

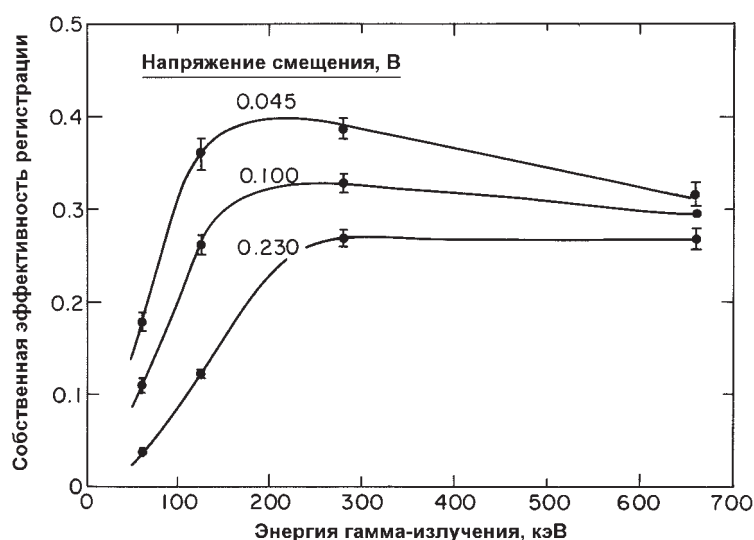


Рис. 19.11. Хорошей собственной эффективности регистрации соответствует малое напряжение смещения. Приведены данные для детектора с органическим сцинтиллятором, имеющим амплитуду импульса 2 В для гамма-излучения с энергией 662 кэВ

19.5.2 Проточные газоразрядные детекторы

Проточный пропорциональный газоразрядный счетчик с очень большой площадью является недорогим видом пропорционального счетчика. Очень тон-

кие окна детектора (100 мкг/см^2) пропускают низкоэнергетическое излучение от поверхностного загрязнения во внутренний объем детектора, который представляет собой тонкостенную полость с большой площадью поверхности. Аргоно-метановая смесь медленно протекает через полость и затем выгорает или рециркулирует с небольшим количеством нового газа. Аргон является газом, в котором происходит детектирование, а метан понижает рабочее напряжение и гасит разряды между электродами счетчика. Разряды, вызываемые примесями в аргоне или вторичным излучением из металлических деталей счетчика, вызывают электронные помехи. Плоскопараллельная геометрия конструкции имеет неравномерное электрическое поле и усиление, поэтому прибор является скорее счетчиком, нежели спектрометром энергии.

Хотя очень большой проточный газоразрядный пропорциональный счетчик является детектором с большим уровнем шумов, его хорошие энергетические характеристики и малая стоимость делают его привлекательным для мониторинга загрязнений, когда измерения могут быть легко повторены без особого ущерба.

19.6 СОСТАВНЫЕ ЧАСТИ МОНИТОРОВ КОНТРОЛЯ ПЕРИМЕТРА

Радиационный монитор периметра, изображенный на рис. 19.1, предназначен для контроля пешеходов, а показанный на рис. 19.12 — контролирует автотранспорт. Все эти мониторы имеют сходные составные части (рис. 19.13). Детекторы реагируют на излучение и передают информацию на блок управления монитора, который обеспечивает питание, обработку и анализ сигналов. Блок управления обычно имеет датчики занятости монитора для определения момента измерения фона и индикаторные лампочки и звуковые сигнализаторы для выдачи сигнала тревоги.

19.6.1 Составные части и их функции

Ниже перечислены составные части мониторов и их функции.

1. Детектор: регистрирует радиоактивное излучение из определенной области пространства, обычно расположенной между двумя и более детекторами.
2. Электроника для обработки сигналов: преобразует импульсы регистрируемого радиоактивного излучения в импульсы напряжения, которые могут передаваться в другое устройство для анализа.
3. Одноканальный анализатор (ОКА): сортирует импульсы в выбранном энергетическом диапазоне. Выходными сигналами являются стандартные логические импульсы.
4. Блок управления: регистрирует логические импульсы с ОКА. Использует результат для определения ложного срабатывания или для проведения измерений при мониторинге. Проводит измерения фона при высоком и низком порогах для обнаружения неправильного срабатывания. Показывает каждый новый результат измерения фона. Сравнивает результаты измерения при мониторинге с порогом обнаружения (раздел 19.4). Использует датчик занятости, чтобы определить, когда измерить фон и когда провести контроль. Помогает при проведении градуировки.



Рис. 19.12. Составные части этого транспортного монитора осуществляют те же самые основные функции, что и составные части пешеходного монитора. Прибор изготовлен фирмой Jomar Systems, Inc., Лос-Аламос, штат Нью-Мексико

5. Датчик занятости: реагирует на присутствие человека или транспортного средства и, если необходимо, на направление движения.

6. Выходное устройство: передает результаты мониторинга визуальными (вспышками света) и звуковыми сигналами.

7. Источник питания: преобразует сетевое напряжение в напряжения постоянного тока, необходимые для работы детекторов и электроники.

Некоторые из этих устройств и их функции обсуждаются ниже более подробно.

19.6.2 Электроника для обработки сигналов

Помехи присутствуют в любой системе регистрации и некоторые из них могут быть устранены сочетанием дискриминаторов двух уровней напряжения, чтобы сформировать ОКА. Окно приема, которое ограничивается определенной областью энергетического спектра, может оптимизировать характеристики радиационного монитора. Например, так как интенсивная часть спектра гамма-излучения высокообогащенного урана лежит в узкой энергетической области, окно приема, ограниченное этой областью энергии гамма-излучения, дает наилучшую чув-

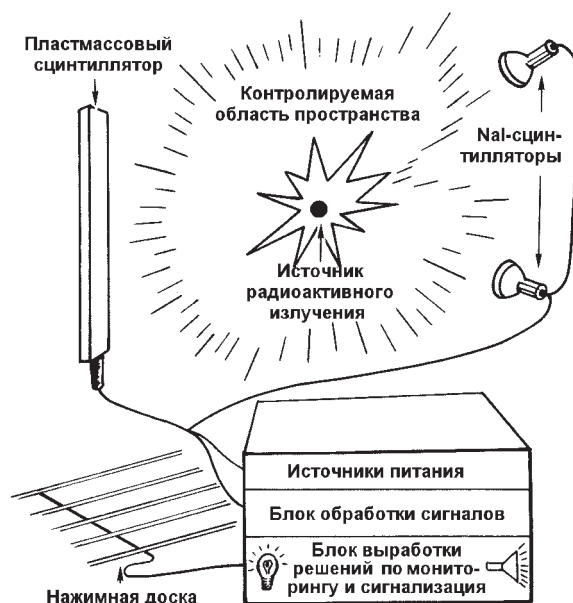


Рис. 19.13. Основные составные части радиационного монитора контроля периметра. Монитор должен обнаруживать радиоактивное излучение, реагировать на присутствие объекта контроля (с помощью нажимной доски), вырабатывать решения и сообщать о результате

ствительность обнаружения урана даже тогда, когда используются такие плохие спектрометры, как органические сцинтилляторы.

В табл. 19.1 приведен пример изменения чувствительности обнаружения урана с изменением размера приемного окна. Приведенная чувствительность, равная S , деленному на корень квадратный из V , связывает результирующий сигнал S в определенном окне со стандартным отклонением фона в том же самом окне. Чем больше приведенная чувствительность, тем легче обнаружить источник урана и тем меньше порог обнаружения. Для значений, указанных в таблице, вероятность обнаружения источника была повышена на 50 % при оптимизации окна ОКА.

Пересчетные устройства регистрируют логические импульсы ОКА в течение периода измерений. Большинство пересчетных устройств имеют интервалы счета, соответствующие среднему времени, в течение которого сигналы присутствуют в мониторе. В конце каждого интервала счета пересчетное устройство передает его сумму в блок выработки решения. Когда монитор не занят, множество таких сумм усредняется, чтобы получить точное значение фона. Во время мониторинга каждая сумма сравнивается с порогом обнаружения.

Таблица 19.1 – Приведенная чувствительность и порог обнаружения для трех окон одноканальных анализаторов (ОКА)

Окно ОКА, В	Энергетическое окно, кэВ	S / \sqrt{B}	Порог обнаружения ^{235}U , г*
0,3-0,85	70-215	7,87	10
0,21-1,5	46-385	6,93	12,2
0,3-7,0	70-1735	6,0	15,2

* Источники — сферические массы; фон — 21 мкР/ч

19.6.3 Источники питания

Высокое напряжение для детекторов обеспечивается регулируемой электронной схемой, которая поддерживает практически постоянное выходное напряжение. Для того чтобы можно было использовать один общий источник питания для различных сцинтилляционных детекторов, для каждого фотоумножителя в схему делителя напряжения введен последовательно соединенный потенциометр для регулировки напряжения.

Мониторы, использующие модули электроники в стандарте NIM для усилителя, ОКА и высоковольтного источника питания, используют низковольтное питание системы NIM. В случае использования микропроцессоров низковольтные источники питания могут работать от аккумуляторов. Эта особенность делает контроллер монитора нечувствительным к кратковременным сбоям питания. В отсутствие резервного питания монитор должен заново начинать работу после каждой потери питания с некоторой задержкой функционирования.

Для случаев долговременного нарушения питания следует предусмотреть резервную сеть питания монитора. Для этого часто используется сеть аварийного питания объекта; если ее нет, то монитор временно может питаться от резервных блоков питания. В ряде случаев на время потери питания в качестве резервного можно использовать ручной монитор.

19.6.4 Диагностика

Простая диагностика может определять дефекты в радиационных мониторах по мере их появления. Диагностические испытания могут выполняться как отдельными, так и объединенными с помощью программы модулями микропроцессорного блока управления. При проверке фона просто сравнивается измеренный фон с верхним и нижним порогами. Неисправный монитор может показывать высокий или низкий фон из-за неработающего или работающего с помехами детектора. Небрежное экранирование детектора или хранение радиоактивного материала вблизи монитора будет также обнаружено при проверке фона. Чтобы обнаружить такие аномалии в случае их появления, обычно проверяется каждое новое значение фона и, при необходимости, отмечается звуковым или визуальным сигналом.

Сложная методика диагностики исследует статистику счета монитора, чтобы определить, что является источником импульсов — регистрация излучения или шумы. В работе [13] описан метод долговременного анализа, который может диа-

гнозировать помехи даже в присутствии источников или изменения интенсивности фона.

Для краткого или длительного анализа подходит дисперсионный анализ, который также применяют при градуировке детектора [14]. Эта методика рассчитывает среднее значение и дисперсию для группы импульсов. Если эти величины приблизительно совпадают, то правильность функционирования детекторов можно быстро установить с помощью дисперсионного анализа. Помехи могут быть обнаружены при однократном измерении, а проблема слабых помех, которые могут повлиять на частоту ложных срабатываний, может быть решена путем усреднения результатов нескольких серий измерений.

19.7 ГРАДУИРОВКА МОНИТОРОВ

Общей причиной таких проблем, как ложные срабатывания и потеря чувствительности, часто является неправильная градуировка. Градуировка включает регулировку коэффициента усиления детекторов, так чтобы они обеспечивали одинаковый отклик на градуировочный источник, а затем регулировку ОКА таким образом, чтобы он реагировал на излучения в ожидаемом диапазоне энергетического спектра. Газоразрядные счетчики не требуют частой градуировки, но градуировку сцинтилляционных детекторов необходимо проводить периодически.

19.7.1 Градуировка сцинтилляционных детекторов

Градуировка сцинтилляционного детектора начинается с установки выбранного значения высокого напряжения питания фотоумножителя, обычно 1000 В, и продолжается регулировкой потенциометра, определяющего коэффициент усиления данного детектора, чтобы получить одинаковые амплитуды сигнала от контрольного источника (например, источника ^{137}Cs с активностью 5 мкКи). Источник размещается в одной геометрии рядом с каждым детектором, а амплитуда импульса контролируется осциллографом на выходе усилителя. Коэффициент усиления для каждого детектора регулируется так, чтобы получить обычно используемую для ^{137}Cs амплитуду импульса — между 2 и 4 В.

19.7.2 Градуировка одноканального анализатора

Дискриминаторы верхнего и нижнего уровня должны быть отрегулированы так, чтобы образовать окно ОКА. Дискриминатор верхнего уровня сначала может быть с использованием осциллографа установлен на требуемую величину из табл. 19.2. Для контроля плутония верхний уровень соответствует 450 кэВ, для высокообогащенного урана (ВОУ) — 220 кэВ.

Дискриминатор нижнего уровня для плутония и ВОУ может быть настроен одинаково на 60 кэВ; однако более низкая настройка, которая чуть выше уровня шума, может улучшить характеристики. Одним из путей установки нижнего значения является проведение измерения интенсивности на входе и выходе с регулировкой дискриминатора до тех пор, пока не будет достигнуто максимальное соотношение S/\sqrt{B} (см. раздел 19.6.2). Эту длительную процедуру можно заменить методикой дисперсионного анализа. При этом выходной сигнал с дискриминато-

ра уменьшается до значения, когда анализ дисперсии регистрирует шум, затем незначительно повышается до точки, когда шум больше не чувствуется.

Таблица 19.2 – Амплитуда импульса гамма-излучения для детекторов с NaI(Tl) и пластмассовым сцинтилляторами*

Энергия гамма-излучения, кэВ	Амплитуда импульса в NaI(Tl)-детекторе, В	Максимальная амплитуда импульса для пластмассового детектора, В
662	2	2
450	1,36	1,20
220	0,66	0,42
60	0,18	0,05

* Детекторы отградуированы на амплитуду импульса 2 В для энергии 662 КэВ.

19.7.3 Периодический контроль градуировки

Чтобы определить, функционирует ли монитор надлежащим образом, необходим его ежедневный контроль. Если при этом применяется источник малой интенсивности (^{133}Ba , 1 мкКи), то проверяются как работа монитора, так и его градуировка. Более тщательная проверка с ядерными материалами выполняется ежеквартально. Дополнительная информация по градуировке мониторов приведена в работе [15].

19.8 МЕТОДЫ ОЦЕНКИ МОНИТОРОВ

Лабораторные испытания должны подтвердить способность монитора надежно обнаруживать радиоактивный материал и определить дефекты конструкции монитора. Обзор оценок пешеходных мониторов ядерных материалов опубликован в работе [16], транспортных мониторов ядерных материалов — в [7] и мониторов загрязнения — в [3]. Эти испытания проводились для определения частоты ложных срабатываний и чувствительности обнаружения на мониторах, которые работали в течение долгого времени без повторной градуировки.

Частота ложных срабатываний и чувствительность взаимозависимы, и определение одного параметра имеет мало смысла без определения другого. Для контроля частоты ложных срабатываний требуется регистрация сигналов срабатывания при постоянном окружающем фоне в течение достаточно длительного периода времени для контроля 10^5 или более циклов выработки решений. Для периодического включения монитора применяется таймер, а между периодами мониторинга уточняется фон. Вероятность ложного срабатывания определяется делением зарегистрированного количества срабатываний на общее количество выполненных тестов. Тогда вероятность ложных срабатываний при проходе через монитор контролируемого лица является результатом числа ложных срабатываний за одно испытание и среднего количества испытаний за проход. Этот вид испытаний не учитывает снижение фона контролируемым лицом, что может привести к

завышенной оценке частоты ложных срабатываний при нормальной эксплуатации.

Чувствительность монитора может определяться путем регистрации вероятности обнаружения монитором проноса через него ядерного материала или источников радиоактивного загрязнения. Интенсивность фона и способ проноса контрольного источника через монитор должны быть нормированы, так же как и другие влияющие на его работу факторы. Поскольку всегда существует некоторая пространственная анизотропия эффективности детектора, испытания должны быть проведены в наименее чувствительной части монитора, например, на уровне пола в пешеходном мониторе. Контрольный источник следует проносить через монитор разными людьми, проходящими своей обычной походкой. Более глубокое рассмотрение вопросов испытаний мониторов представлено в работе [17].

19.9 ПРИМЕРЫ МОНИТОРОВ КОНТРОЛЯ ПЕРИМЕТРА

19.9.1 Ручные мониторы контроля периметра

Ручными мониторами загрязнения обычно проводят измерения мощности дозы для определения вида излучения, хотя некоторые многоцелевые приборы используют фильтры или несколько типов детекторов, реагирующих на различные виды излучения. Мониторы контроля загрязнения являются простыми дешевыми аналоговыми устройствами, которые эксплуатируются нерегулярно и обычно питаются от аккумуляторов. На рис. 19.14 показаны три монитора контроля загрязнений. Два из них — мониторы гамма-излучения: в левом используется NaI(Tl)-детектор, а в правом — счетчик Гейгера-Мюллера большой площади. Монитор в центре — опытный образец многоцелевого прибора, имеющего детекторы для четырех видов излучения, включая нейтронное. Этот прибор [18] вос-



Рис. 19.14. Три различных ручных монитора контроля загрязнения. Слева направо: прибор контроля гамма-излучения со сцинтиллятором NaI, многоцелевой монитор с четырьмя типами детекторов и монитор поверхностного радиоактивного загрязнения со счетчиками Гейгера-Мюллера. Левый и правый приборы изготовлены фирмой Technical Associates, Каногга Парк, Калифорния

полняет потребность в удобном мониторе со стандартными методиками эксплуатации и градуировки. Чувствительность ручных мониторов загрязнения варьируется в широких пределах. Большинство реагирует на излучение мощностью выше 0,1 мкР/ч, хотя мониторы на основе NaI(Tl) могут работать при естественном фоне в несколько мкР/ч.

Три ручных монитора ядерных материалов, показанные на рис. 19.15, имеют сцинтилляционные детекторы и электронику, работающую от аккумуляторов. В двух из них применяются NaI(Tl)-детекторы, а в том, что слева, используется пластмассовый сцинтиллятор. Приборы обычно имеют перезаряжаемые аккумуляторы и работают в непрерывном режиме контроля пешеходов и транспорта. Каждый монитор генерирует звуковой сигнал, когда он чувствует значительное увеличение интенсивности излучения. Кроме применения в качестве монитора контроля периметра эти весьма чувствительные приборы обнаружения гамма-излучения могут применяться в качестве мониторов поверхностного загрязнения или в качестве мониторов обследования утилизируемого оборудования. Они реагируют на излучение с мощностью дозы в несколько мкР/ч и могут обнаруживать активность 0,5 мкКи изотопа ^{137}Cs при быстром, но тщательном осмотре [19]. Они могут обнаружить несколько граммов высокообогащенного урана или доли грамма плутония низкого выгорания в самых неблагоприятных условиях (неблагоприятные условия характеризуются интенсивностью фона в 25 мкР/ч и максимальным самопоглощением в ядерном материале). В реальной жизни всегда будут реализовываться более хорошие характеристики. Допускаются частые ложные срабатывания этих приборов, одно или два за минуту, поскольку срабатывания в определенной зоне определяют местоположение радиоактивного материала. Случайные срабатывания, которые не повторяются в одной и той же зоне, не уменьшают эффективность мониторинга, потому что они подтверждают, что прибор работает.



Рис. 19.15. Три ручных монитора ядерных материалов, которые автоматически обнаруживают значительные превышения интенсивности излучения над уровнем фона. Левый и центральный блоки изготовлены фирмой TSA Systems, Inc., Баулдер, Колорадо. Правый блок изготовлен фирмой CMS, Inc., Голета, Калифорния

19.9.2 Автоматические пешеходные мониторы

Для контроля радиоактивного загрязнения пешеходов промышленностью изготавливаются автоматические мониторы на основе проточных газоразрядных пропорциональных счетчиков, которые в качестве порталов в режиме прохода обнаруживают менее 1 мкКи изотопа ^{137}Cs , а при использовании в качестве высокочувствительных мониторов в режиме ожидания обнаруживают активность продуктов деления или активации ниже 100 нКи. На рис. 19.3 показан порталный монитор, высокая чувствительность которого достигается тем, что поверхность тел досматриваемых пешеходов находится в непосредственной близости от пропорциональных счетчиков. Близость поверхности тела человека к детектору и увеличенное время мониторинга помогают достигнуть высокой чувствительности.

Мониторы ядерных материалов, работающие в режиме прохода (см. рис. 19.1), могут обнаружить менее 10 г высокообогащенного урана и менее 0,3 г плутония низкого выгорания в самых неблагоприятных условиях работы. Типичная частота ложных срабатываний составляет одно срабатывание на 4000 проходов через монитор.

19.9.3 Автоматические транспортные мониторы

Автоматические мониторы загрязнения транспортных средств применяются довольно редко, так как внутренние поверхности транспортного средства обычно должны контролироваться детекторами почти вплотную. Исключением является монитор автотранспорта, показанный на рис. 19.16, который имеет детектор, расположенный в дорожном покрытии. Монитор способен реагировать на материал,



Рис. 19.16. Этот транспортный монитор проверяет активированные материалы, вывозимые с объекта, на котором имеется ускоритель. Расположенный в земле детектор вызывает сигнал тревоги и фотографирует транспортное средство в случае, если система воспринимает интенсивность излучения, вдвое превышающую уровень фона

активированный излучением ускорителя, который может вывозиться с объекта. Этот Лос-Аламосский монитор обнаруживает сигнал с уровнем интенсивности, превышающим удвоенный уровень фона. Он предоставил в 1983 г. первое доказательство ввоза в Соединенные Штаты радиоактивной стали из Мексики.

Диапазон автоматических транспортных мониторов контроля ядерных материалов простирается от простых порталов, работающих в режиме проезда, показанных на рис. 19.17, до сложной станции, показанной на рис. 19.12. Кроме расположения детекторов транспортные порталные мониторы во многом похожи на пешеходные порталные мониторы. Порталы движущегося транспорта обнаруживают излучение с интенсивностью, превышающей радиационный фон на 15 %. В самых неблагоприятных условиях они могут обнаружить менее 10 г плутония низкого выгорания с менее, чем одним ложным срабатыванием за 4000 проездов.



Рис. 19.17. Портальный монитор ядерных материалов проверяет автотранспорт, медленно (скорость — 8 км/ч) проезжающий между колоннами с детекторами

Автотранспорт находится на станции мониторинга, показанной на рис. 19.12, в течение одной минуты или менее. Детекторы расположены небольшими группами выше и ниже транспортного средства, и каждая группа детекторов служит как бы отдельным самостоятельным монитором с собственной электроникой для обработки сигналов и логической выработки решения. Продолжительное время мониторинга и близость группы детекторов к контролируемой поверхности обеспечивают высокую чувствительность: порог обнаружения составляет около 5 % превышения над уровнем фона, что позволяет обнаруживать количества ядерных материалов, подобные тем, которые обнаруживаются в пешеходных мониторах.

19.9.4 Обзор характеристик мониторов

В табл. 19.3 [15] и 19.4 [20] обобщены характеристики, полученные для различных мониторов ядерных материалов. В табл. 19.3 перечислены категории обнаружения ядерных материалов для пешеходных мониторов в режиме прохода при самых худших условиях (определенных в разделе 19.9.1 и в сноске * к таблице) и частоте ложных срабатываний — 1 за 4000 проходов. Масса материала, которая может быть обнаружена, приведена для четырех категорий характеристик, каждая из которых требует определенных сочетаний детекторов, расположения портала и сложности логических схем обработки сигналов.

Четыре категории характеристик в табл. 19.3 базируются на нормировании количества обнаруживаемого ядерного материала. Для категории I требуется обнаружение 1 г плутония низкого выгорания при интенсивности фона 25 мкР/ч. Эта задача может быть выполнена небольшими детекторами с расстоянием от объекта до портала более 80 см с помощью простых методик. Для категории II требуется обнаружение 10 г высокообогащенного урана, а для категорий III и IV необходимы лучшие характеристики мониторов, чем нынешние нормативные показатели. Для категорий II–IV требуются большие детекторы, расстояния до портала менее 80 см и самые современные алгоритмы обнаружения. Заметим, что обнаружение небольших масс ядерного материала связано с регистрацией сигналов малой амплитуды. Следовательно, категории мониторов с большим номером более чувствительны к процессам, связанным с колебаниями радиационного фона. Мониторы категории III и IV подходят только для случаев, когда фон относительно постоянен.

В табл. 19.4 обобщены чувствительности обнаружения материала для различных типов транспортных мониторов. Оценки этих характеристик также приведены для самых худших условий (определенных в разделе 19.9.1 и в сноске * к таблице).

Таблица 19.3 – Категории обнаружения ядерных материалов для мониторов в режиме прохода* [15]

Категория	Описание	Уран**, г	Плутоний***, г
I	Эталон плутония	64	1
II	Эталон урана	10	0,29
III	Повышенная чувствительность	3	0,08
IV	Высокая чувствительность	1	0,03

*Условия испытаний: интенсивность фона 25 мкР/ч; эталонный металлический контрольный источник закреплен ниже щиколотки человека, идущего с нормальной скоростью и с походкой, приводящей к колебаниям источника внутри монитора. Результаты испытаний должны дать 95 % уверенности в том, что вероятность обнаружения составляет 50 % или выше при частоте ложных срабатываний 1/4000 проходов или меньше.

**Высокообогащенный уран.

***Плутоний низкого выгорания, только что отделенный от дочерних продуктов или защищенный кадмиевым покрытием толщиной 0,4-0,8 мм.

Таблица 19.4 – Чувствительность обнаружения ядерного материала в транспортных мониторах в самых неблагоприятных условиях [20]

Тип транспортного монитора	Порог обнаружения *		Интенсивность ложных срабатываний **
	плутоний низкого выгорания, г	БОУ, г	
Ручной монитор	3–9	100–300	1/100
Транспортный портал	10	1000	1/4000
Станция мониторинга	0,3	40	3/1000

*В самых неблагоприятных условиях в неподвижном 1-тонном автофургоне, кроме портала 5-метровой ширины, где он движется со скоростью 8 км/ч. Интенсивность фона 20 мкР/ч и достаточно высокий уровень экранирования конструктивными элементами автотранспорта. Обнаружение подразумевает вероятность обнаружения 50 % или выше. При нормальных условиях получаются лучшие характеристики.

**Интенсивность ложных срабатываний для пустого монитора.

ЛИТЕРАТУРА

1. EG&G Inc., Santa Barbara Division (R.W. Hardy, R.B. Knowlen, C.W. Sandifer, and W.C. Plake), US Patent No. 3,670,164, 1972.
2. W.E. Kunz, "Portable Monitor for Special Nuclear Materials," Los Alamos Scientific Laboratory publication LASL-77-18 (1977).
3. M. Littleton, "High Sensitivity Portal Monitors—A Review," Institute of Nuclear Power Operations report 82-001-EPN-01 (1982).
4. US Department of Energy Order 5632.2, "Physical Protection of Special Nuclear Material," 1979.
5. US Atomic Energy Commission Regulatory Guide 5.7, "Control of Personnel Access to Protected Areas, Vital Areas, and Material Access Areas," 1973.
6. P.E. Fehlau, J.C. Pratt, J.T. Markin, and T. Scurry, Jr., "Smarter Radiation Monitors for Safeguards and Security," *Nuclear Materials Management XII* (Proceedings Issue), 294 (1983).
7. P.E. Fehlau, C. Garcia, Jr., R.A. Payne, and E.R. Shunk, "Vehicle Monitors for Domestic Perimeter Safeguards," Los Alamos National Laboratory report LA-9633-MS (1983).
8. A. Wald, *Sequential Analysis* (Dover Publications, Inc., New York, 1973).
9. P.E. Fehlau, K.L. Coop, and J.T. Markin, "Application of Wald's Sequential Probability Ratio Test to Nuclear Materials Control," in Proceedings of Joint Specialists Meeting, ESARDA/INMM, Ispra, Italy, 1984.
10. C.N. Henry and J.C. Pratt, "A New Containment and Surveillance Portal Monitor Data Analysis Method," *ESARDA* 10, 126-131 (1979).
11. C.R. Hurlbut. "Plastic Scintillators — A Survey," presented at American Nuclear Society winter meeting, Nov. 1985 (available from Bicron Corp., Newbury, Ohio).

12. P.E. Fehlau and G.S. Brunson, "Coping with Plastic Scintillators in Nuclear Safeguards," *IEEE Transactions on Nuclear Science* NS-30, 158 (1983).
13. E. Appel, M. Giannini, and A. Serra, "A New Method of Self-Diagnosis for Pulse Measuring Systems," *Nuclear Instruments and Methods* 192, 341 (1981).
14. K.V. Nixon and C. Garcia, "Hand-Held Pulse-Train-Analysis Instrument," *IEEE Transactions on Nuclear Science* NS-30, 331 (1983).
15. P.E. Fehlau, "An Applications Guide to Pedestrian SNM Monitors," Los Alamos National Laboratory report LA-10633-MS (1986).
16. P.E. Fehlau, T.E. Sampson, C.N. Henry, J.M. Bieri, and W.H. Chambers, "On-Site Inspection Procedures for SNM Doorway Monitors," Los Alamos Scientific Laboratory report LA-7646 (NUREG/CR-0598) (1979).
17. P.E. Fehlau, "Standard Evaluation Techniques for Containment and Surveillance Radiation Monitors," *ESARDA* 15, 195 (1982).
18. C.J. Umbarger, G.O. Bjarke, B.H. Erkkila, F. Trujillo, D.A. Waechter, and M.A. Wolf, "New Generation of Radiacs: Small Computerized Multipurpose Radiation Monitors," *IEEE Transactions on Nuclear Science* NS-30, 528 (1983).
19. P.E. Fehlau, "Hand-Held Search Monitor for Special Nuclear Materials. User's Manual," Los Alamos National Laboratory publication LALP-84-15 (1984).
20. P.E. Fehlau, "An Applications Guide to Vehicle SNM Monitors," Los Alamos National Laboratory report LA-10912-MS (1987).

Глава 20

Качественные и полуколичественные измерения

*Н. Энслин и Х. А. Смит, мл.
(Переводчик Н.В. Мошкина)*

20.1 ВВЕДЕНИЕ

Измерения ядерных материалов осуществляются обычно с помощью количественного анализа, цель которого состоит в определении численного значения количества ядерного материала. Количественный анализ выполняется с наивысшей из возможных точностью и сходимостью результатов измерения, при этом предварительные сведения об измеряемых образцах могут быть достаточно обширными. Однако существует целый ряд задач контроля, которые могут быть решены в большей степени с помощью качественной информации об измеряемых образцах, предварительные сведения о которых могут быть различными. Вот несколько примеров:

- определение характеристик немаркированных или ошибочно маркированных образцов;
- определение содержания ядерного материала по принципу “да/нет” для задач его извлечения, захоронения, транспортировки или обеспечения ядерной безопасности;
- проведение быстрой инвентаризации с целью проверки соответствия заявленным значениям;
- подтверждение получателем данных поставщика;
- определение мест отложений ядерных материалов;
- технологический контроль;
- контроль за перемещением материалов.

Большинство этих задач могут быть выполнены с помощью качественных или полуколичественных измерений, которые являются достаточно быстрыми, чтобы сэкономить время, деньги и снизить облучение персонала.

Методы неразрушающего анализа хорошо подходят к этим типам измерений, потому что они, как правило, являются быстрыми, неинтрузивными и способны измерять упаковку целиком. Если неразрушающее измерение осуществляется тщательно и точно, его можно рассматривать как *количественный анализ материала*. Если измерение является полностью качественным и определяет только характерный признак, качество или характеристику материала, то его можно рассматривать как *качественное (атрибутивное) измерение*. Между этими крайними типами измерений находятся полуколичественные измерения, к числу которых относятся определение характеристик отходов, контроль за перемещением материалов, проведение быстрой инвентаризации и идентификация, измерение

отложений ядерных материалов. Такие полуколичественные измерения часто очень важны в повседневной эксплуатации установок ядерного топливного цикла.

В разделе 20.2 изложены атрибутивные признаки ядерных материалов и способы их измерений. В остальных частях главы рассматриваются полуколичественные измерения отходов (раздел 20.3), подтверждающие измерения при проведении инвентаризации и передаче материалов (раздел 20.4), измерения отложений (разделы 20.5 и 20.6). Полуколичественные измерения сложнее, чем качественные измерения, но проще, чем полные количественные измерения. Для рассмотрения двух других задач измерений, которые попадают в категорию полуколичественных измерений, см. главу 18 по анализу облученного топлива и главу 19 по порталному мониторингу.

20.2 ИЗМЕРЕНИЕ АТРИБУТИВНЫХ ПРИЗНАКОВ ЯДЕРНЫХ МАТЕРИАЛОВ

Основная задача в измерении атрибутивных признаков ядерных материалов заключается просто в определении наличия или отсутствия ядерного материала в образце. В этом смысле термин “ядерный материал” относится ко всем формам и соединениям урана и плутония, к радиоактивным источникам, а также к америцию, торию и другим радиоактивным элементам. Основные атрибутивные признаки по излучению (относительно типа материала) перечислены ниже:

- альфа-излучение;
- бета-излучение;
- гамма-излучение;
- инфракрасное излучение (тепловое);
- полный поток нейтронов;
- нейтронные совпадения;
- высокое значение сечения деления для тепловых нейтронов (с испусканием мгновенных и запаздывающих гамма-квантов и нейтронов).

Информация о скоростях испускания излучений этих атрибутивных признаков содержится в главах 1, 11 и 21 и в работах [1] и [2].

Ядерный материал обычно является также очень плотным и сильно ослабляет гамма-излучение. Следующим атрибутивным признаком урана и плутония является наличие разрывов в их сечениях поглощения рентгеновского излучения на K- и L_{III}-краях поглощения (глава 9). Из всех атрибутивных признаков, перечисленных выше, только коэффициенты пропускания гамма-излучения на краях поглощения обеспечивают однозначную идентификацию материала. Однако на практике, характеристики процесса деления урана и плутония являются уникальными, поскольку на установках топливного цикла отсутствуют делящиеся изотопы других элементов. Гамма-спектрометрия также обеспечивает недвусмысленную идентификацию, особенно, если спектры измеряются с высоким разрешением. Хотя другие упомянутые атрибутивные признаки также являются необходимыми характеристиками ядерного материала, они не подходят для однозначной идентификации.

В полномасштабном анализе ядерных материалов почти все атрибутивные признаки, представленные выше, когда-нибудь измеряются. Простой путь рас-

смотрения качественных измерений — это отношение к ним как к неполному анализу. Данные получаются точно так же, как и в полном анализе, но измерения проводятся быстрее, с меньшей точностью и часто без использования абсолютной градуировки измерительного устройства. Даже полуколичественные подтверждающие или проверочные измерения могут заключаться только в определении изменения относительной величины атрибутивного признака от образца к образцу. В табл. 20.1 представлены измерительные приборы, которые всегда имеются на ядерных установках, и атрибутивные признаки, которые они могут обнаруживать. Для полноты изложения в таблицу включены некоторые приборы активного анализа.

Качественные измерения могут быть очень эффективным средством для определения характеристик, проверки или контроля ядерного материала. Измеренные в отдельности, атрибутивные признаки ядерного материала обеспечивают простые ответы на вопросы, возникающие при инвентаризации. Измерением нескольких атрибутивных признаков можно получить очень надежную или даже однозначную информацию с минимальными усилиями.

Таблица 20.1 – Измерительные приборы и определяемые ими атрибутивные признаки

Прибор	Атрибутивный признак
Визуальная проверка	Упаковка, предыстория, цвет
Весы	Вес, плотность
Альфа-счетчик	Наличие альфа-частиц, загрязнение
Счетчик Гейгера	Грубая оценка интенсивности бета/гамма-излучения; наличие U, Pu или Am
Гамма-спектрометр	Спектр гамма-излучения; характерные признаки U, Pu; обогащение; выгорание
Радиограф	Плотность, распределение, форма
Плотномер	Плотность; края поглощения рентгеновского излучения; характерные признаки U, Pu
Калориметр	Тепловыделение; наличие высокой альфа-активности; теплота подразумевает наличие Pu, Am
Пассивный счетчик полного потока нейтронов	Испускание нейтронов; наличие спонтанных делений или (α, n)-реакций
Пассивный счетчик нейтронных совпадений	Спонтанные или вынужденные деления; вероятное наличие Pu или Cf
Активный счетчик нейтронных совпадений	Вынужденные деления; вероятное наличие U или Pu
Калифорниевый шаффлер	Запаздывающие нейтроны вынужденных делений; вероятное наличие U или Pu
Сканер топливных стержней	Запаздывающие нейтроны или гамма-кванты; вероятное наличие U или Pu

20.3 КОЛИЧЕСТВЕННАЯ СОРТИРОВКА ОТХОДОВ

20.3.1 Цель

На установках ядерного топливного цикла часто образуются большие количества отходов, которые загрязнены лишь в незначительной степени или предположительно загрязнены вследствие их близости к другим материалам. Отходы этого типа обычно упаковываются в 55-галлонные (200-литровые) бочки или в контейнеры большого объема и отправляются на площадки с поверхностным захоронением для последующей возможной переработки. Для минимизации объема отходов, подлежащих в конечном счете переработке, важно определить уровень радиоактивности в отходах в месте их образования. Современные нормативные документы допускают захоронение отходов в хранилищах, не предусматривающие дальнейшей переработки, если уровень радиоактивности ниже 100 нКи/г отходов. (Средний уровень радиоактивности грунта в США составляет около 10 нКи/г. До недавнего времени уровень радиоактивности для постоянного захоронения определялся этим пределом). Цель сортировки низкоактивных отходов неразрушающими методами заключается в том, чтобы дополнить или заменить административный контроль за сортировкой отходов при уровне радиоактивности 100 нКи/г. Имеющийся опыт показывает, что объем неперерабатываемых отходов может быть уменьшен в 10 и более раз.

Неразрушающее измерение низкоактивных отходов затруднено тем, что используются большие контейнеры (начиная от ящиков объемом 57 л и заканчивая бочками объемом 208 л и упаковками размером 122×122×213 см (3300 л)), а количество содержащегося в них ядерного материала небольшое. Радиационный уровень 100 нКи/г эквивалентен приблизительно 160 мг ^{239}Pu , 1 г ^{233}U или 4,4 кг ^{235}U , содержащимся в 100 кг отходов. Вследствие больших размеров контейнеров и низкого уровня радиоактивности, в неразрушающих измерениях большее значение придается чувствительности, а не точности. Обычными требованиями к измерениям часто являются чувствительность в диапазоне от 1 до 10 нКи/г и погрешность $\pm 20\%$. Этот уровень погрешности считается достаточным для сортировки отходов при условии, что должна быть устранена большая систематическая недооценка, чтобы избежать потери значительного количества перерабатываемого ядерного материала, и чтобы реальное количество захораниваемого ядерного материала не превысило норм ядерной безопасности.

20.3.2 Чувствительность к гамма-квантам и нейтронам

В табл. 20.2 представлены приблизительные пределы обнаружения методик неразрушающего анализа для ^{235}U и плутония (10 % ^{240}Pu , 90 % ^{239}Pu) [3-5]. Пределы обнаружения даны для измерений в течение 1000 с для сигнала, превышающего фон на три стандартных отклонения (доверительная вероятность 99 %). Предел обнаружения является функцией отклика детектора на грамм ядерного материала и окружающего фона (как задано уравнениями (15.7) и (15.8) в главе 15). Пределы, приведенные в табл. 20.2, основаны на разумном оценивании вклада фона. Предел обнаружения также является функцией размеров и эффективности детектора. Пределы в табл. 20.2 представляют измеренные или экстраполированные значения для детекторов, способных измерять 55-галлонные бочки в случаях, когда не нужна свинцовая защита для снижения фона от гамма-излучения продуктов деления, содержащихся в отходах.

Вообще, пассивный счет гамма-излучения с помощью сегментного сканирования не является достаточно чувствительным для сортировки отходов с уровнем радиоактивности 100 нКи/г. Для уровней загрязнения свыше 1 г сегментное гамма-сканирование является наиболее надежной методикой для количественных измерений ^{235}U и ^{239}Pu вплоть до предела проникающей способности гамма-квантов с энергиями 186 и 414 кэВ. Для 57-литровых картонных ящиков, содержащих отходы со средней плотностью 0,1 г/см³, чувствительность метода пассивной регистрации рентгеновских квантов L-линии составляет менее 1 нКи/г [6].

Хотя результаты пассивных гамма-измерений ядерных отходов обычно занижены вследствие самоослабления гамма-излучения, результаты пассивных нейтронных измерений обычно завышены из-за дополнительных нейтронов, возникающих в результате (α ,n)-реакций. Примеры влияния (α ,n)-реакций представлены в разделе 15.5.1. Активные нейтронные методы не подвержены влиянию фона, если источник подсветки достаточно мощный. Однако результаты измерений активными методами могут быть сильно смещены либо в сторону завышения, либо в сторону занижения в зависимости от эффектов замедления и поглощения входящих и выходящих нейтронов в матрице образца. Для конкретного способа сортировки отходов выбор методики измерений должен проводиться с учетом таких факторов, как стоимость, простота, чувствительность и проникающая способность излучения.

Таблица 20.2 – Пределы обнаружения для ядерных отходов* [3-5]

Методика неразрушающего анализа	Эффективность, %	^{235}U	Pu (10 % ^{240}Pu)
Пассивная регистрация гамма-квантов	1	100 мг	100 мг
Пассивная регистрация тепловых нейтронов	15	H/O**	18 мг
Пассивная регистрация совпадений тепловых нейтронов	15	H/O	6 мг
Пассивная регистрация совпадений быстрых нейтронов	25	H/O	300 мг
Активная регистрация совпадений тепловых нейтронов	15	10 г	35 г
Активная регистрация совпадений быстрых нейтронов	25	70 мг	130 мг
Фотонейтронная подсветка (источник 3×10^8 н/с)	0,25	8 мг	6 мг
Регистрация запаздывающих нейтронов (источник 2×10^9 н/с)	15	6 мг	14 мг
Дифференциальное затухание нейтронного сигнала	14	1 мг	1 мг

* Время счета 1000 с; превышение сигнала над фоном — 3σ ; без защиты от гамма-излучения продуктов деления; ядерный материал в форме оксида.

**H/O — не обнаруживается

20.4 ПОДТВЕРЖДАЮЩИЕ ИЗМЕРЕНИЯ

20.4.1 Цель

На многих установках, находящихся под контролем Комиссии по ядерному регулированию и Министерства энергетики США, часто и в больших масштабах осуществляются процессы передачи и хранения необлученных ядерных материалов. Множество вопросов обеспечения гарантий возникает во время процесса отправки, получения и проверки инвентарных количеств ЯМ. Проведение измерений может помочь подтвердить, что:

- а) не было переключений материалов при транспортировке;
- б) идентификация учетной единицы проведена правильно;
- в) отсутствует радиационная опасность для рабочих;
- г) данные об инвентарных количествах достоверны.

Такие подтверждающие измерения могут оказаться более простыми, чем измерения, проводимые для целей учета. Например, на их проведение требуется меньше времени и меньшее количество процедур по распаковке или переупаковке материала. Также они могут быть более разнообразными. Однако в общем случае они менее точны. Подтверждающие измерения определяют такие атрибутивные признаки как вес, спектр гамма-излучения, полный поток нейтронного излучения и обогащение, которые, взятые в целом, очень трудно имитировать.

Когда ядерный материал передается с одной установки на другую, существующие нормативные документы предписывают, чтобы получатель производил проверку количества мест, идентификацию и измерение веса-брутто учетных единиц в поставке. Обычно получатель должен выполнить учетные измерения в течение 10 календарных дней. На практике, однако, этого часто трудно достичь из-за: а) отсутствия необходимого технического персонала и аппаратуры неразрушающего анализа; б) длительности времени, необходимого для проведения химического анализа и передачи образцов со склада и на склад хранения; в) радиационного облучения персонала во время упаковки и распаковки. К тому же трудности при измерении относительно небольшого количества материалов скрапа могут задержать подведение баланса материала по поставке. Один из надежных подходов, облегчающий эти проблемы, заключается в проведении подтверждающих измерений как на установке отправителя, так и на установке получателя. Причем измерения на обеих установках проводятся одинаковыми или однотипными измерительными приборами [7]. Такие измерения могут подтвердить, что в поставке нет отсутствующих, неправильных или поддельных учетных единиц.

Когда ядерный материал хранится на установке, существующие нормативные документы предписывают проведение периодических инвентаризаций на всей установке и в хранилище ядерных материалов. Подтверждающие измерения, проводимые в это время на случайно выбранном образце, могут помочь идентифицировать неправильно маркированные учетные единицы и повысить достоверность процесса инвентаризации [8].

20.4.2 Варианты неразрушающего анализа

Методики неразрушающего анализа хорошо подходят для подтверждающих измерений благодаря их скорости и возможности измерять учетную единицу в целом. В некоторых случаях возможно также измерять весь транспортный кон-

тейнер, хотя и с некоторой потерей точности. В этом разделе изложены варианты подтверждающих измерений, основанные на неразрушающем анализе радиационных характеристик плутония или урана.

Для большинства образцов плутония сочетание калориметрии и гамма-спектрометрии обеспечивает наименьшую достигаемую погрешность: от 0,5 до 2 % для однородных материалов. Однако такое измерительное оборудование обычно предназначается только для учетных измерений из-за его относительно высокой стоимости, сложности и низкой производительности. Более простым вариантом для материалов с низкой плотностью является пассивная регистрация гамма-квантов в пике с энергией 414 кэВ от ^{239}Pu либо в дальней геометрии, либо посредством сегментного сканирования. Однако большинство материалов, содержащих плутоний, которые привлекательны для возможных переключений, являются слишком плотными для регистрации гамма-излучения и наилучшим образом измеряются с помощью пассивной регистрации нейтронов. Эта методика относительно проста и может иногда применяться для 30- или 55-галлонных (114- или 208-литровых) транспортных бочек без распаковки. Колодезный счетчик нейтронов должен иметь равномерную эффективность по всему объему образца. К тому же мертвое время электроники должно быть небольшим и хорошо известным, чтобы можно было точно определять скорости счета.

Подтверждающие нейтронные измерения плутония могут быть основаны на регистрации полного потока нейтронов или нейтронных совпадений, при этом число совпадений является более конкретным атрибутивным признаком. Время измерений находится в диапазоне от 100 до 1000 с. Типичные значения погрешности быстрых подтверждающих измерений составляют от 1 до 10 % для хорошо охарактеризованных материалов, 25 % для скрапа с примесями и 50 % для гетерогенных материалов с высокой интенсивностью потока нейтронов (α, n)-реакции [8]. Однако повторяемость результатов грубых измерений составляет приблизительно 1 %. В техническом плане было бы чрезвычайно трудно создать поддельную учетную единицу с тем же весом, скоростью счета полного потока нейтронов и скоростью счета нейтронных совпадений, что и у реальной учетной единицы. Это также справедливо для гетерогенных материалов с высокими интенсивностями альфа-распада, для которых точность анализа является низкой, однако измерения нейтронных атрибутивных признаков достаточно точны.

Для пассивных нейтронных измерений плутония нижеследующие рекомендации показывают, как наблюдаемые скорости счета соотносятся с конкретными атрибутивными признаками материала:

1. Полная скорость счета нейтронов пропорциональна содержанию воспроизводящего изотопа, но зависит также от скорости (α, n)-реакции. Если содержание воспроизводящего изотопа может быть определено из скорости счета совпадений, тогда любой “избыток” полной скорости счета может быть объяснен химическим составом или примесями.

2. Скорость нейтронных совпадений пропорциональна содержанию воспроизводящего изотопа, но может повышаться за счет вынужденных делений.

3. Отношение числа нейтронных совпадений к полному числу нейтронов является функцией саморазмножения образца и косвенным образом — содержания делящегося изотопа. Для гетерогенного плутониевого скрапа с очень сильной интенсивностью (α, n)-реакций отношение числа нейтронных совпадений к полно-

му счету нейтронов может являться наилучшей из возможных мерой содержания ^{239}Pu , возможно с точностью в пределах 10 %, если сделана поправка на содержание ^{240}Pu [9].

4. Разность между числом нейтронных совпадений с кадмиевой облицовкой в колодезном счетчике и без нее, деленная на полное число нейтронов, является мерой содержания делящегося изотопа (раздел 17.3.3 и [10]).

Подтверждающие измерения урана более трудны, чем аналогичные измерения плутония. Скорости испускания альфа-частиц недостаточно высоки, чтобы провести измерение тепловыделения. Возможны измерения обогащения с регистрацией гамма-излучения с энергией 186 кэВ, но информативной является только поверхность материала, и требуется хорошо коллимированная геометрия снаружи транспортной бочки. Для материалов с низкой плотностью могут использоваться гамма-измерения в дальней геометрии. Они также используются для проведения подтверждающих измерений материалов высокой плотности с точностью в пределах коэффициента 2 [8].

Измерение образцов урана в балк-форме требует использования активных нейтронных систем, простейшей из которых является активный колодезный счетчик совпадений AWCC (Active Well Coincidence Counter) (раздел 17.3.1). В режиме измерения тепловых нейтронов AWCC подходит для образцов, содержащих от 5 до 100 г ^{235}U . В режиме измерения быстрых нейтронов использование прибора ограничивается образцами, содержащими 50 г и более ^{235}U , даже для времени счета 1000 с вследствие высокого фона случайных совпадений нейтронов источников подсветки. Между источниками и ураном должна поддерживаться хорошая привязка, для чего обычно необходимо использование небольших контейнеров. Таким образом, активный счет совпадений урана не является таким же разнообразным или простым, как пассивный счет совпадений плутония.

Ниже приведены два конкретных примера применения активного счета нейтронов урана:

1. Смешанные уран-плутониевые образцы: сигнал от пассивных совпадений пропорционален содержанию ^{240}Pu , но может быть увеличенным за счет вынужденного деления в ^{235}U . Поправка на саморазмножение может компенсировать вынужденное деление, но не обеспечит непосредственно определяемого содержания ^{235}U . Определение содержания делящихся изотопов ^{235}U или ^{239}Pu практически не осуществимо активным счетом совпадений и требует более сложных активных нейтронных измерительных систем.

2. Высокообогащенный уран в баллонах с UF_6 : отношение числа нейтронных совпадений к полному числу нейтронов пропорционально содержанию ^{235}U с точностью в пределах от 2 до 10 % (раздел 17.3.4).

20.4.3. Современная практика

Несколько последующих примеров отражают современную практику проведения подтверждающих измерений на установках в Хэнфорде, Рокки Флэтс, Лос-Аламосе и Саванна-Ривер. Примеры иллюстрируют различные подходы и уровни точности; они располагаются в тексте примерно по мере увеличения степени достоверности.

Была проведена проверка разнообразных хранимых ядерных материалов с помощью подтверждающих измерений на случайной выборке образцов из налич-

ного инвентарного количества [8]. Предпочтительными методиками были пассивная регистрация нейтронных совпадений плутония и пассивная регистрация гамма-квантов урана в дальней геометрии. Приблизительно 5 % этих измерений оказались недействительными из-за плохой счетной статистики, неподходящих матриц, геометрий материалов или отсутствия соответствующих стандартных образцов. Другие 5 % были оценены как недостоверные, поскольку результаты расходились с данными, полученными ранее на аналогичных учетных единицах. Для последних 5 % учетные измерения были выполнены с привлечением измерительной аппаратуры или методики высшего качества. Примерно в половине этих случаев более точные учетные измерения показали, что первоначальная маркировка образцов действительно была неправильной.

Подтверждающие измерения поступающего металлического скрапа плутония в транспортных контейнерах типа “птичья клетка” осуществлялись пассивной регистрацией нейтронных совпадений [11]. Измерение самого транспортного контейнера, а не каждой содержащейся внутри учетной единицы, привело к восьмикратному сокращению рабочего времени и тридцатикратному снижению радиационного облучения. Погрешность измерения для всего транспортного контейнера составила приблизительно 5 % по сравнению с 2,5 % (1σ) для отдельных учетных единиц. Получатель смог проверить поступающий груз в течение трех рабочих дней.

Подтверждающие измерения оксида плутония выполнялись как отправителем, так и получателем с использованием счетчиков нейтронных совпадений разной конструкции [8]. Счетчики измеряли отдельные банки вне транспортных контейнеров. Попыток нормировки отклика одного счетчика относительно отклика другого счетчика сделано не было. Вместо этого подтверждение основывалось на отношении откликов. Отношения полного числа нейтронов до и после отправки согласовывались с погрешностью 0,5 % (1σ), а отношения числа нейтронных совпадений согласовывались с погрешностью 1,5 % (1σ). Получатель также сравнивал результаты своих измерений реальной массы плутония, полученные путем регистрации нейтронных совпадений, с результатами, полученными методом калориметрического анализа для восьми партий банок. Это сравнение не было точным, т.к. разброс значений составил 4,1 % (1σ). Повышенная погрешность определения массы объясняется различиями в осадке, плотности оксида, влажности или изотопном составе между партиями. Например, счет нейтронных совпадений от 1 кг оксида плутония может измениться приблизительно на 1 % при изменении плотности на 5 % (см. рис. 16.14 в главе 16).

Подтверждающие измерения содержания плутония в золе, песке, шлаках, тиглях и оксидах проводились получателем и отправителем с помощью сегментных гамма-сканеров различных конструкций [8]. Стандартные образцы были изготовлены отправителем, откалиброваны на калориметре отправителя и отправлены получателю. Результаты измерений получателем содержания ^{239}Pu согласовались с результатами измерений отправителем в пределах от 1 до 4 % (1σ).

Подтверждающие измерения металлического плутония и оксида плутония, содержащих примеси, проводились двумя одинаковыми счетчиками нейтронных совпадений, которые измеряли транспортные контейнеры с 30-галлонными бочками. На рис. 20.1 показан разрез одного из счетчиков. Эти счетчики являются первыми измерительными приборами, разработанными специально для подтверждающих измерений [12]. Конструкция счетчика включает две дверцы, ролики

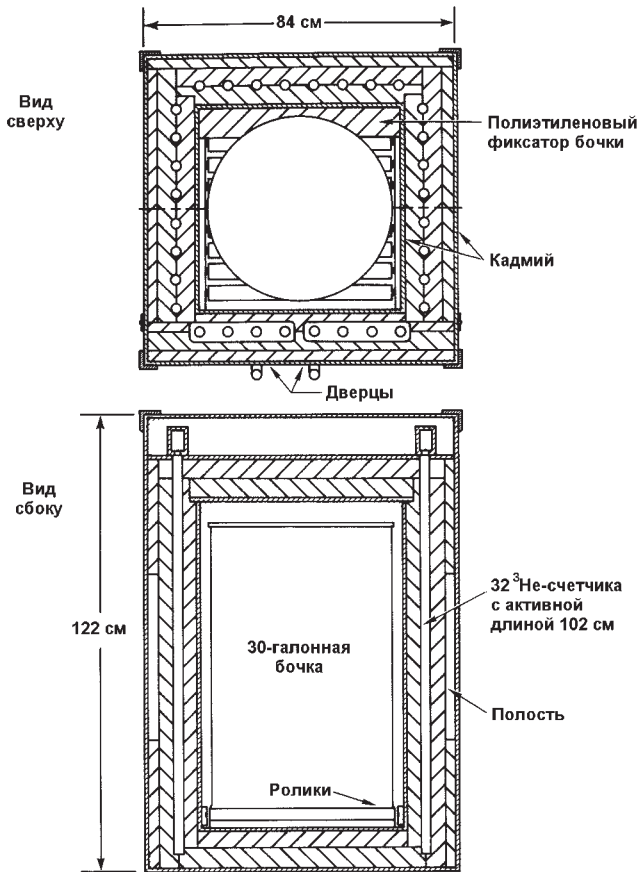


Рис. 20.1. Разрез одного из счетчиков, построенного специально для подтверждающих измерений отправителем и получателем плутония в 30-галлонных транспортных бочках [11 и 12]

для бочек, манипулятор бочки и полости в полиэтиленовой стенке для выравнивания вертикального профиля эффективности. Нормировка откликов приборов отправителя и получателя осуществлялась путем обмена источниками ^{252}Cf , данными по измерениям источника и данными по измерению фона. Подтверждающие измерения состояли из трех 100-секундных циклов регистрации полного потока нейтронов. Первоначальные результаты обеспечили точность проверки отправителем/получателем в пределах от 2 до 3 % для оксида и в пределах 1 % для металла [11]. Имеет место небольшое смещение, которое может быть обусловлено осаждением содержимого контейнера во время перевозки.

20.5 ОТЛОЖЕНИЯ ЯДЕРНОГО МАТЕРИАЛА

Термин “отложение” относится к накоплению ядерного материала внутри технологического оборудования ядерных установок. Другими общепринятыми терминами для такого материала являются “скрытое инвентарное количество”, “технологические потери” и “незавершенная продукция”. Выбор терминологии частично зависит от применения или точки зрения. Например, ядерный материал, который остается в установке после переработки всего продукта в балк-форме

может быть назван “незавершенной продукцией”. Материал, который остается после тщательной уборки, протирки, кислотного выщелачивания и промывки, может быть назван “фиксированным отложением”.

Из-за высокой экономической ценности ядерного материала, необходимости обеспечения радиационной и ядерной безопасности, а также с целью обеспечения гарантий против краж или переключений ядерных материалов, важно минимизировать отложения, измерить или смоделировать их величины и удалить их. Причины и механизмы возникновения отложений, а также методики моделирования и измерения отложений рассматриваются в оставшихся разделах этой главы.

20.5.1 Причины и механизмы

Ядерный материал имеет тенденцию к накапливанию в трещинах, порах и областях с плохой циркуляцией внутри технологического оборудования. Кроме того, на внутренних поверхностях труб, резервуаров, трубопроводов, печей, перчаточных боксов и другого оборудования могут накапливаться значительные отложения. Когда площадь внутренней поверхности большая, суммарное количество отложений может оказаться достаточным для влияния на заводскую инвентаризационную разность [13]. Количество отложений зависит от характера технологического процесса и физической формы промежуточных растворов, осадков и порошков. Кроме того, нарушения технологии могут привести к большим, скоротечным и непрогнозируемым отложениям материалов.

Ниже представлены некоторые механизмы накопления материалов [14]:

- постепенное осаждение мелких частиц в зонах с плохой циркуляцией или низкой скоростью потока;
- химическая реакция ядерных материалов с внутренними стенками или миграция материалов внутрь стен;
- твердые или жидкие образования продукта или выпадение осадка в результате непредусмотренных химических реакций;
- электростатическое осаждение или накопление заряженных частиц;
- разбрызгивание, кипение или спекание материалов в результате неуправляемых химических реакций.

20.5.2 Величина отложения

Исходя из механизмов образования отложений, представленных в предыдущем разделе, можно определить зоны, в которых отложения могут быть значительными. К таким зонам относятся: угловые изгибы, стыки и швы в трубах и трубопроводах; застойные зоны или зоны с турбулентным потоком; оборудование с большими внутренними поверхностями, такое, как резервуары с кольцами Рашига, фильтры, перчаточные боксы и печи; а также технологические процессы с растворами агрессивных кислот или высокими концентрациями ядерных материалов. Величину отложений в этих зонах трудно оценить из-за ее зависимости от таких факторов, как компоновка оборудования, частота технологических отказов, ремонтных и очистных процедур и производительность установки.

Некоторые типовые величины отложений, наблюдаемых в оборудовании на некоторых установках по переработке урана и плутония, даны в табл. 20.3. Приве-

денные числовые значения являются типичными только для зон со значительными отложениями, но по ним можно предположить, что экстраполяция по всем основным зонам технологического процесса на установках даст десятки или сотни килограммов суммарных отложений. Величина отложений может составлять от 0,1 до 0,2 % полной производительности установки даже после тщательной разрушающей зачистки оборудования. Если ядерный материал вводится в новую установку, то первоначальное отложение может составлять от 1 до 10 % от производительности установки на первом этапе ее эксплуатации. Поскольку конструкция установки может оказывать влияние на количество отложений, Комиссия по ядерному регулированию предложила проектные соображения по минимизации отложений [15-17].

Таблица 20.3 – Типичные величины отложений в оборудовании установок

Перчаточные боксы, г	0 – 50
Перчаточные боксы (после разрушающей зачистки), г/м ²	2
Дробилки, г	1 – 100
V-образные смесители, г	1 – 50
Фильтры перед перчаточными боксами, г	2 – 100
Фильтры после перчаточных боксов, г	10 – 100
Внутренние поверхности оборудования (после обычной зачистки), г/м ²	10 – 50
Трубы (после разрушающей зачистки), г/м	0,3
Трубопроводы (без зачистки), г/м	1 – 100
Стеклянные колонны, г	1
Кольцевые резервуары, г	1 – 10
Резервуары, заполненные кольцами Рашига (после промывки), г	1 – 500
Поддоны для растворителей, г	10 – 500
Небольшие печи для прокаливания, г	5 – 50
Печи, г	50 – 500
Поддоны для печей, г	1 – 10
Печи для сжигания, г	Неск. тысяч
Бетонные сливные бассейны, г	Неск. тысяч

20.5.3 Статистическое моделирование

Определение мест локализации материала, отложенного в технологическом оборудовании, и его переработка чрезвычайно сложны. Даже измерение количества отложений является трудной задачей и подвержено множеству неопределенностей (раздел 20.6). Возможным альтернативным методом для получения некоторых данных по отложениям, необходимых для периодической инвентаризации, является оценка отложений с помощью статистического моделирования [14]. Такой подход начинается с тщательных, контролируемых измерений отложений

(либо неразрушающими методами, либо зачисткой) в технологическом процессе при известных значениях температуры, скорости потока, производительности и т.п. Измеренные отложения моделируются в виде функции некоторых важных переменных. Затем последующие отложения в этом технологическом процессе можно оценить и предсказать на основе данной модели.

Чтобы проверить правильность этого подхода, была проведена серия экспериментов по управляемому накоплению отложений и их измерению [14]. На рис. 20.2 показана компоновка оборудования, используемого во время одного такого эксперимента, который был проведен для определения отложений порошкообразной пыли урана в зависимости от характеристик материала, скорости воздушного потока и распыляющегося материала. Механическое устройство по производству порошкообразной пыли оксида урана было размещено внутри перчаточного бокса и обеспечивало источник пыли в воздухе. В оксид урана были введены радиоактивные индикаторы с концентрацией приблизительно 1 млрд.^{-1} , для того, чтобы повысить точность определения отложений измерением гамма-излучения. Сравнение с результатами зачистки показало, что погрешность измерений отложений составила около 20 %.

На рис. 20.3 проиллюстрированы некоторые данные, полученные в эксперименте [14]. На этом рисунке показана зависимость увеличения отложения в фи-

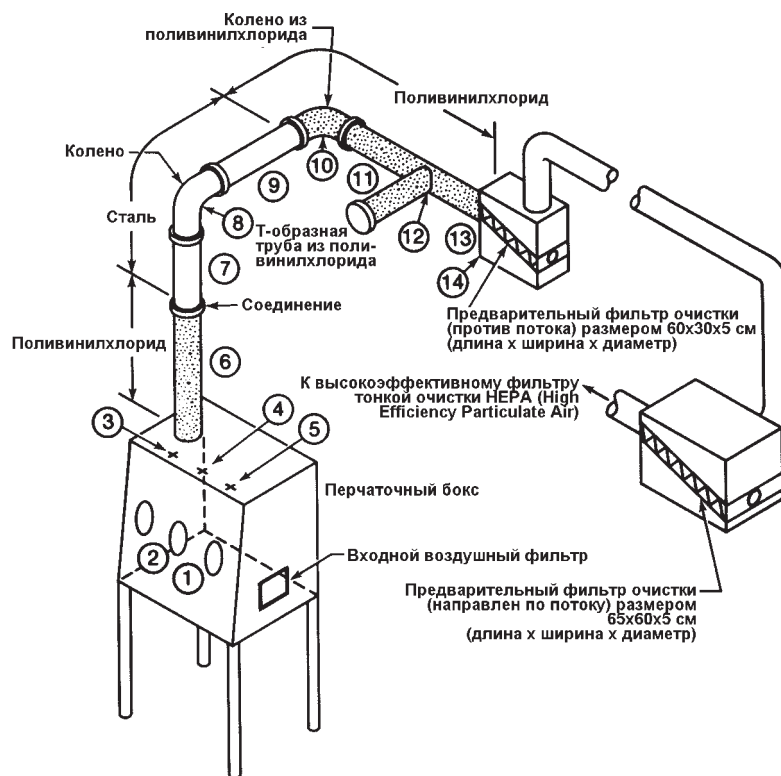


Рис. 20.2. Компоновка оборудования, используемого во время эксперимента по управляемому накоплению и измерению отложений. Показан перчаточный бокс, в котором образуется порошкообразная пыль, трубопровод, фильтры и расположение 14 точек измерений [14]

льтрах от величины воздушного потока и производительности. Величина отложения может быть представлена в виде квадратичной функции производительности, как показано гладкими кривыми на рисунке. Эти данные являются хорошим примером равномерного увеличения отложений с ростом производительности установки. Другая типичная картина, наблюдаемая в управляемых экспериментах, представлена на рис. 20.4 [14]. Отложения внутри печи прокаливания (кальцинатора) сначала резко увеличивались по линейной зависимости от возрастания производительности до тех пор, пока не образовался слой материала. Затем количество отложений флуктуировало около установившегося значения до тех пор, пока не изменились рабочие условия. В данном случае повышение рабочей температуры в кальцинаторе с 700 °С до 900 °С привело к увеличению отложений. В период работы в стабильных условиях данные были обработаны с помощью фильтра Кальмана, что представлено сглаженной кривой в средней части рисунка.

Поведение отложений, проиллюстрированное на рис. 20.4, является в некоторой степени показательным для всего технологического процесса установки. Когда ядерный материал впервые вводится в новую установку, отложения могут быстро нарастать по мере того, как оборудование покрывается слоем материала, а щели им заполняются. В течение последующих лет стабильной эксплуатации и регламентных зачисток количество отложений медленно увеличивается и может приблизиться к некоторому асимптотическому значению.

Эксперименты по управляемому накоплению и измерению отложений, описанные выше, предполагают, что модели оценивания отложений могут быть полезными, если они базируются на хороших первоначальных измерениях, технологический процесс стабилен, а база данных периодически обновляется. В этих условиях можно снизить частоту и количество измерений. Эксперименты по управляемо-

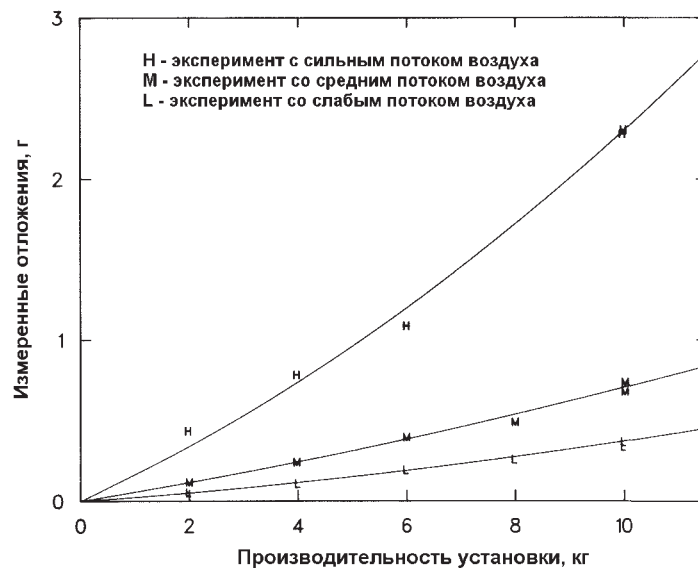


Рис. 20.3. Зависимость количества отложений мелкодисперсного порошка U_3O_8 от скорости воздушного потока и суммарной производительности установки, измеренного в выходном воздушном фильтре (точка 14 на рис. 20.2) во время эксперимента по управляемому образованию пыли

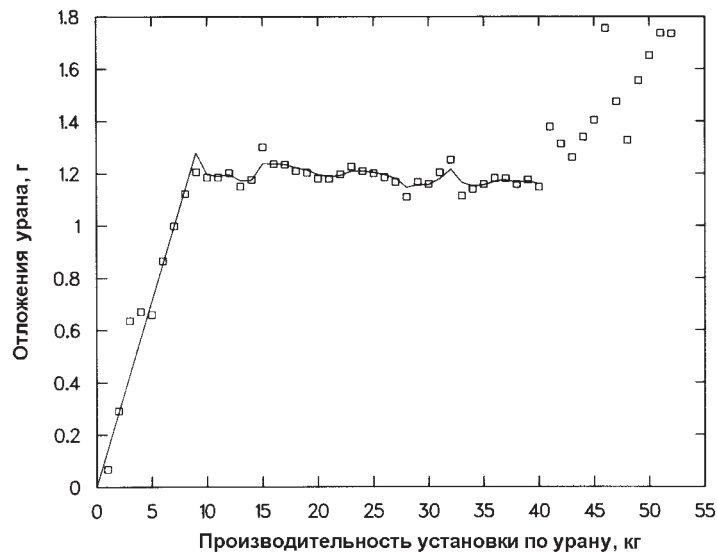


Рис. 20.4. Зависимость количества отложений оксида урана в печи прокаливания (кальцинаторе) от производительности установки, определенного во время эксперимента по управляемому накоплению отложений. Этот рисунок представляет пример выравнивания количества отложений на установившемся значении после первоначального образования. При производительности 40 кг урана увеличение температуры печи привело к последующему образованию отложений [14]

му накоплению отложений также обеспечивают наилучшую точность, получаемую в измерениях отложений, сделанных в идеальных условиях. Погрешности, полученные в этих экспериментах [14], включены в сводку опубликованных данных измерений отложений, которые приведены в таблице раздела 20.6.7.

20.6 ИСКУССТВО И НАУКА ИЗМЕРЕНИЯ ОТЛОЖЕНИЙ

Измерение ядерных материалов, отложенных в установках по переработке, является как искусством, так и наукой. Измерение является отражением влияния политических, экономических, медицинских требований и требований по безопасности, а также законов физики. Для практика процесс измерения часто длителен, утомителен и происходит в достаточно трудных условиях, что показано на рис. 20.5. Работа сочетает в себе черты детективного расследования и поиска клада, как это захватывающе описано Цакером и Деженом в работе [18]. В действительности, стоимость кампании по тщательному измерению отложений составляет около 10 долларов на 1 г обнаруживаемого материала, т.е. сравнима с ценой золота.

Ядерный материал, накопленный в трубах, трубопроводах, перчаточных боксах, оборудовании, полах, стенах и т.п. обычно распределяется рассеянным и неравномерным образом. Аналитику трудно определить геометрию измерения, идентифицировать форму материала и измерить его без помех от соседних источников излучений. По этим причинам измерение отложений равнозначно искусству, для которого требуются опыт, воображение, чувство соразмерности и удача.

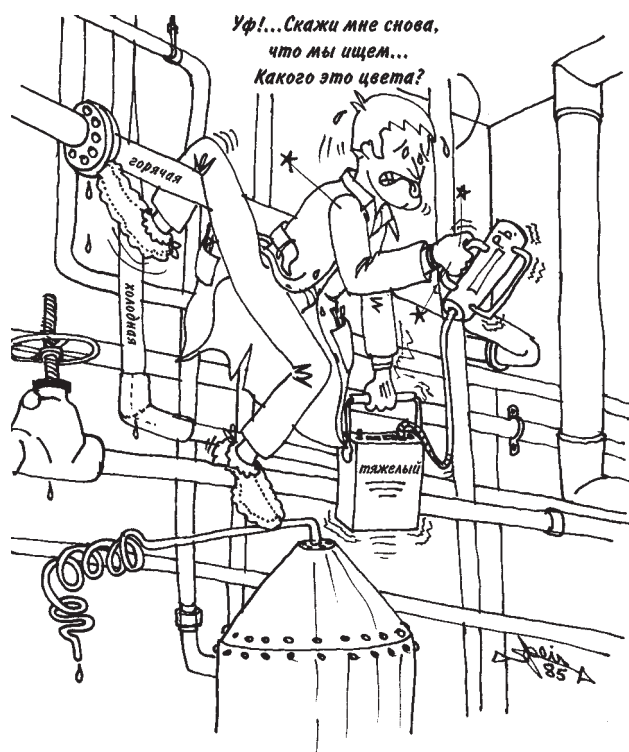


Рис. 20.5. Измерения отложений являются как наукой, так и искусством и, как показано на этой карикатуре, обычно проводятся в сложных условиях

Для измерения отложений также необходимы научно-технические знания по источникам и детекторам излучений, процедурам градуировки, геометрии и анализу погрешностей. Все эти вопросы рассматриваются в оставшейся части этой главы.

20.6.1 Полезные характеристики излучений

В табл. 20.4 перечислены источники гамма- и нейтронного излучений, которые обладают достаточной проникающей способностью, чтобы проводить измерения отложений урана и плутония. Указанные в таблице значения энергий нейтронов представляют собой приблизительные средние энергии для реальных спектров нейтронов спонтанного деления, вынужденного деления или (α, n)-реакций. Интенсивности нейтронного излучения представляют приблизительные значения интенсивностей (рассчитанные по табл. 11.1 и 11.3 главы 11), которые указывают на относительную легкость или сложность проведения анализа различных изотопов или химических соединений.

Большинство измерений отложений урана и плутония основано на пассивной регистрации пика гамма-излучения ^{235}U с энергией 186 кэВ и совокупности пиков гамма-излучения ^{239}Pu с энергиями 375 и 414 кэВ. Обычно для регистрации этих гамма-квантов применяются как портативные детекторы NaI, так и термолюминесцентные дозиметры (ТЛД), поскольку указанные гамма-кванты обладают наивысшими энергиями (и, следовательно, большей проникающей способностью) при необходимых интенсивностях. Такие интенсивности достаточны для

измерения отложений с чувствительностью 1 г материала. Когда уран смешан с торием, измерение пика ^{235}U с энергией 186 кэВ может быть затруднено из-за помех от излучения дочерних продуктов тория с энергиями от 200 до 300 кэВ [19]. Когда измеряется плутоний с детекторами NaI, традиционно устанавливается энергетическое окно в области от 375 до 450 кэВ. В него будет собираться большинство гамма-квантов с энергией 414 кэВ и множество гамма-квантов с энергией 375 кэВ, но не попадут гамма-кванты от ^{241}Pu или ^{241}Am с энергией 332 кэВ [13].

Большие количества ^{238}U могут быть проанализированы с помощью измерения низкоинтенсивных, но обладающих высокой проникающей способностью гамма-квантов с энергией 1001 кэВ от $^{234\text{m}}\text{Pa}$, являющегося дочерним продуктом ^{238}U . После химического разделения урана требуется выдержка около 100 дней, чтобы активность пришла в равновесие с интенсивностью, указанной в табл. 20.4.

Таблица 20.4 – Полезные радиационные характеристики для измерения отложений

Изотоп	Методика	Характеристика	Интенсивность
^{235}U	Пассивные гамма-измерения	Гамма-кванты с энергией 186 кэВ	43 000 квантов/г·с
	Активные нейтронные измерения	Нейтроны с энергией 1 МэВ	
UO_2	Пассивные нейтронные измерения	Нейтроны с энергией 2 МэВ	0,03 нейтрон/г·с*
UO_2F_2	Пассивные нейтронные измерения	Нейтроны с энергией 1 МэВ	2,0 нейтрон/г·с*
UF_6	Пассивные нейтронные измерения	Нейтроны с энергией 1 МэВ	5,8 нейтрон/г·с*
^{238}U	Пассивные гамма-измерения	Гамма-кванты с энергией 1001 кэВ	100 квантов/г·с
Pu	Пассивные измерения теплоты	Инфракрасное излучение	
^{239}Pu	Пассивные гамма-измерения	Гамма-кванты с энергией 414 кэВ	34 000 квантов/г·с
		Гамма-кванты с энергией 375 кэВ	36 000 квантов/г·с
		Гамма-кванты с энергией 129 кэВ	140 000 квантов/г·с
^{240}Pu	Пассивные нейтронные измерения	Нейтроны с энергией 2 МэВ	1000 нейтрон/г·с
PuO_2	Пассивные нейтронные измерения	Нейтроны с энергией 2 МэВ	120 нейтрон/г·с**
PuF_6	Пассивные нейтронные измерения	Нейтроны с энергией 1 МэВ	7300 нейтрон/г·с**

* Высокообогащенный уран, содержащий 1 % ^{234}U .

** Плутоний низкого выгорания, содержащий 0,03 % ^{238}Pu , 6,5 % ^{240}Pu , 92,5 % ^{239}Pu .

Метод пассивной регистрации нейтронов может оказаться полезным при необходимости измерения отложений в насосах, вентилях или другом крупном оборудовании, которое является слишком плотным, чтобы дать возможность выйти гамма-квантам. Нейтроны лучше проникают сквозь металл и большие залежи отложений, чем гамма-кванты, но для создания сильного сигнала необходимо большее количество ядерного материала. Нейтронные измерения более сложны в интерпретации, поскольку нейтроны не обладают уникальным значением энергии, их трудно коллимировать, они подвержены эффектам размножения и замедления, и их число может возрасти на порядок в результате реакций (α, n) в химических соединениях. Эти эффекты приводят к тому, что нейтронные измерения переоценивают количество отложений, в то время как эффекты самоослабления при гамма-измерениях приводят к недооценке количества отложений.

Как показано в табл. 20.4, пассивный счет нейтронов применим для контроля умеренно больших количеств урана в форме оксида и фторида. Нейтронный сигнал обусловлен реакциями (α, n) в оксидных или фторидных соединениях. Также возможен активный анализ ^{235}U , но он очень чувствителен к находящимся вблизи отражателям, замедлителям и поглотителям, и отклик приблизительно обратно пропорционален четвертой степени расстояния между измеряемым ураном и прибором [20]. Достаточно практичными являются пассивные нейтронные измерения плутония по спонтанному делению ^{240}Pu , являющемуся основным источником нейтронов, если нет больших количеств фторидных соединений.

В настоящее время на нескольких установках изучается возможное применение приборов сканирования инфракрасного излучения для обнаружения отложений плутония. Основным источником инфракрасного излучения является тепло, образуемое при альфа-распаде ^{238}Pu . Инфракрасное сканирование оборудования с целью обнаружения “горячих точек” технически возможно, однако неизвестно, можно ли провести количественные измерения.

20.6.2 Детекторы и приборы считывания

Из-за трудных условий, в которых должны проводиться измерения отложений, измерительная аппаратура должна быть портативной, прочной и простой в эксплуатации. Также желательно, чтобы в случае необходимости работы от батарей или внутри пластмассового корпуса, аппаратура имела простое кнопочное управление и низкую потребляемую мощность. Большинство приборов, используемых в настоящее время, — это, в основном, приборы радиационного контроля, портативные многоканальные анализаторы и коллимированные детекторы NaI. Они удовлетворяют этим требованиям.

Приборы радиационного контроля представляют собой счетчики Гейгера или небольшие коллимированные или неколлимированные детекторы NaI, которые реагируют на гамма- или бета-излучение. Они используются для быстрого обследования больших площадей с целью обнаружения мест скопления отложений и обычно оснащены измерителями скоростей счета со звуковым индикатором мощности излучения. Затем проводятся количественные измерения отложений с использованием детекторов NaI (рис. 20.6). Разрешение и эффективность этих детекторов, составляющие примерно от 7 до 10 %, обычно достаточны для измерений отложений. Типичные размеры кристалла для измерений плутония составляют 5 см в диаметре и 5 см толщины, а для измерений урана — 5 см в диа-

метре и 1 см толщины. Детекторы коллимируются с целью ограничения поля обзора и снижения фона. Коллиматоры должны состоять из ~ 1,5 см свинца для измерений плутония и ~ 0,5 см свинца — для измерений урана, чтобы поглощалось по крайней мере 98 % падающего излучения [13 и 21]. Эквивалентная толщина свинца должна также покрывать обратную сторону детектора, чтобы уменьшить фон. Кроме того, передняя сторона детектора должна быть покрыта слоем свинца 1,5 мм (для измерений плутония) и слоем кадмия 0,8 мм (для измерений урана и плутония, размещенным с внутренней стороны свинца), чтобы уменьшить скорость счета от образующегося рентгеновского излучения.

Коммерчески доступные блоки электроники для детекторов NaI включают “Эберлайнский стабилизированный анализатор” (глава 4), “Брукхейвенский стабилизированный анализатор” [18] и “Рокки Флэтский анализатор” [22], в которых используется электроника типа Ludlum. Все эти блоки представляют собой портативные стабилизированные двухканальные анализаторы. Портативные многоканальные анализаторы полезны для идентификации отложений неизвест-



Рис. 20.6. Пример использования коллимированного детектора NaI и портативного блока электроники для измерения отложений в резервуарах, заполненных кольцами Рашига

ного состава и в настоящее время становятся доступными в малогабаритном варианте для замены вышеперечисленных стабилизированных анализаторов. Коммерческие приборы включают ND-6 фирмы Nuclear Data, приборы серии 10 фирмы "Канберра" (Canberra) и прибор модели 2056-4К фирмы Davidson.

Для нейтронных измерений отложений может использоваться направленный нейтронный зонд, описанный в главе 15 [23]. Низкое отношение сигнала с передней стороны детектора к сигналу с обратной стороны детектора, которое лежит в диапазоне от 2 до 4, требует тщательного ослабления фона и использования защитного экрана для заглушки коллиматора [13]. Обычно слой полиэтилена толщиной от 10 до 15 см снижает интенсивность нейтронов деления в 10 раз. Также для измерений отложений могут использоваться большие плоские детекторы, когда портативность не так важна. Плоские детекторы используются для оценки суммарного количества отложений в помещении [24] и отложений в больших печах прокаливания (кальцинаторах) [25].

Термолюминесцентные дозиметры (ТЛД) размещаются вокруг внешней части перчаточных боксов [26] и в других труднодоступных местах внутри кальцинаторов [27]. Типичными кристаллами для ТЛД являются фториды лития и кальция. Преимуществом фторида лития является его большая доступность, в то время как фторид кальция обладает более высокой чувствительностью и не требует сложного цикла отжига. Для обоих материалов требуется комбинированная защита от низкоэнергетического рентгеновского излучения.

20.6.3 Процедуры измерения отложений

Планирование измерений отложений начинается с рассмотрения технических и организационных вопросов. Важным условием является то, будут ли эти измерения периодическими, регламентными и можно ли их начать до начала активной эксплуатации установки. Подобные измерения до активной эксплуатации очень полезны для определения зон накопления отложений, измерения фонов, измерения ослабления в стенках оборудования и градуировки сложных геометрий. При этом могут изготавливаться и устанавливаться для дальнейшего применения держатели, зажимы и специальные защитные экраны. Другое важное условие заключается в том, будут ли измерения отложений абсолютными или относительными. Абсолютные измерения более предпочтительны, поскольку они дают значения суммарного количества материала (в граммах), накопленного в установке. Однако изменение в отложениях легче измерить, чем реальное количество отложений из-за влияния систематических погрешностей. Периодические относительные измерения могут оказаться достаточными для контроля плановых операций по зачистке оборудования или для гарантии того, что отложения не влияют на ежемесячный баланс инвентарного количества материала.

Цикл работ по измерению отложений состоит из следующих этапов:

1. Группа по измерениям изучает технологический процесс установки и консультируется с операторами установки с целью определения зон с потенциально высоким содержанием отложений.
2. Быстрое обследование радиационной обстановки с использованием коллимированных и неколлимированных приборов радиационного контроля выделяет зоны, в которых отложено наибольшее количество материала.

3. Большая часть оставшегося времени отводится на проведение измерений в тех зонах, где сосредоточена основная масса материала. Другие зоны измеряются более поверхностно или оцениваются экстраполированием. Отметим, однако, что зоны с низким содержанием отложений на единицу площади могут содержать большие количества материалов. И наоборот, локализованные “горячие” зоны могут содержать относительно небольшие абсолютные количества материалов.

4. Детекторы отложений коллимируются и градуируются с использованием известных стандартных образцов. Для контроля стабильности измерительной аппаратуры используются небольшие контрольные источники. Каждый детектор градуируется для зоны отложений в виде точки, линии и некоторой плоскости.

5. Количественные измерения отложений в установке начинаются именно с этого этапа. Каждый узел оборудования, который нужно измерить, характеризуется как точка, линия или плоскость зоны накопления отложений. Поле обзора детектора ограничивается таким образом, чтобы каждую зону накопления отложений можно было бы отличить от соседних и от фона. Группа по измерениям регистрирует дату, время, интервал счета, идентифицированную зону накопления отложений, предполагаемую геометрию накопления материала, расстояние между источником и детектором, тип и толщину исследуемого материала и скорость счета. Длительность каждого измерения отложений должна быть достаточной для получения нескольких сотен или нескольких тысяч отсчетов. Затем измеряется фон с использованием заглушки коллиматора, сменной защиты или посредством передвижения боковых сторон детектора таким образом, чтобы в поле обзора детектора попала не исследуемая зона, а какая-то часть фона.

6. Для получения оценки неопределенности необходимо измерять зону накопления отложений с различных направлений, разного расстояния, предполагая разные геометрии (например, точка или плоскость), или путем использования разных методик измерений. В этом отношении первостепенную роль играют опыт и мастерство исследователей. Они должны догадаться о распределении материала, выбрать расстояние для измерений и геометрию градуировки, соответственно, чтобы определить среднее количество отложений с учетом флуктуаций и использовать свое время наилучшим образом.

7. Хотя поправки на ослабление, величины отложений (в граммах) и оценка погрешности могут быть рассчитаны и позже, члены группы по измерениям должны провести некоторые приблизительные расчеты на месте. Это очень важно сделать, чтобы быть уверенным в том, что измерения проведены в том месте, где это наиболее необходимо, и не получить больших погрешностей измерений.

20.6.4 Градуировка для точечной, линейной зоны и зоны в виде плоскости

Во время измерительной кампании каждая зона накопления отложений характеризуется как точка, линия или плоскость таким образом, чтобы наблюдаемая скорость счета могла быть легко переведена в граммы ядерного материала. Например, насос, фильтр или вентиль могут рассматриваться как точечный источник, если размеры зоны отложений малы по сравнению с расстоянием между источником и детектором, и если отложения полностью находятся в поле обзора детектора. Длинная труба или трубопровод могут рассматриваться как линейный

источник, а стена, пол или широкий прямоугольный трубопровод, который простирается далеко за пределы поля обзора детектора, могут рассматриваться как источники в виде плоскости. Иногда выбор типа градуировки в виде точки, линии или плоскости не очевиден и является в действительности результатом рассуждений или опыта. Иногда группа по измерениям может попробовать два или даже все три варианта и сравнить окончательные результаты, полученные для отложений. Или же группа по измерениям может измерить скорость счета в виде функции расстояния до зоны накопления отложений, чтобы с ее помощью выбрать подходящий вариант градуировки. Для точечного источника измеренный отклик уменьшается обратно пропорционально квадрату расстояния ($1/r^2$). Для линейного источника отклик уменьшается обратно пропорционально расстоянию ($1/r$). Для однородного источника в виде плоскости отклик не зависит от расстояния. Этот последний случай не так очевиден, как кажется. Он следует из бесконечного угла обзора коллимированного детектора, который осматривает площадь, увеличивающуюся пропорционально r^2 , таким образом компенсируя снижение отклика с расстоянием, пропорциональное $1/r^2$.

Можно, конечно, выполнить градуировку для точки, линии и плоскости с помощью стандартных точечных источников, линейных источников и плоских источников, как это описано в разделе 20.6.5. Однако также возможно и обычно даже проще получить все три градуировки от одного точечного источника. Процедура такой градуировки гамма-детектора описана ниже.

1. Выполните коллимирование детектора, заглубив его в свинцовую защиту на один или два диаметра кристалла так, чтобы получить половинный угол обзора $\theta/2$, равный от 15 до 30 градусов (см. рис. 20.7). Эта коллимация должна теперь оставаться зафиксированной, поскольку постоянные градуировки для линии и плоскости сильно зависят от угла обзора.

2. Поместите точечный градуировочный источник на фиксированное расстояние r_0 (обычно от 1 до 2 м). Измерьте скорость счета C_0 . Затем сдвигайте источник вбок с фиксированным шагом шириной s (обычно от 10 до 20 см), как показано на рис. 20.8. Определите скорость счета C_i для каждого шага i и откорректируйте каждую скорость счета на фон. Результат представляет собой кривую отклика, аналогичную примеру, представленному на рис. 20.8.

3. Кривая отклика детектора в виде функции бокового смещения спадает вследствие конечного угла обзора коллимированного детектора. Если коллимирование было оптимальным, с половинным углом обзора $\theta/2$, то детектор может осматривать длину линейного источника, равную $L \approx r_0\theta$, или площадь плоского источника, равную $A \approx \pi r_0^2 \theta^2 / 4$. Действительно, эквивалентная длина L однородного линейного источника, которая дает ту же скорость счета, что и интегрированная кривая отклика, равна

$$L = 2s \sum C_i / C_0 - s. \quad (20.1)$$

4. Эквивалентная площадь A однородного плоского источника, которая дает ту же скорость счета, что и интегрированная кривая отклика, равна

$$A = \sum a_i C_i / C_0. \quad (20.2)$$

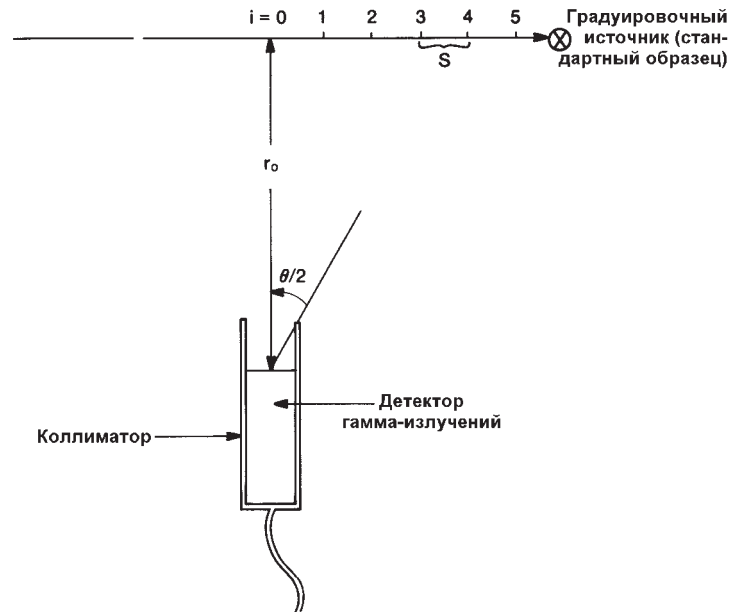


Рис. 20.7. Геометрия, необходимая для расчета постоянных градуировки для линейной и плоской геометрий. Точечный градуировочный источник, расположенный на фиксированном расстоянии r_0 , перемещается в боковом направлении с фиксированным шагом s

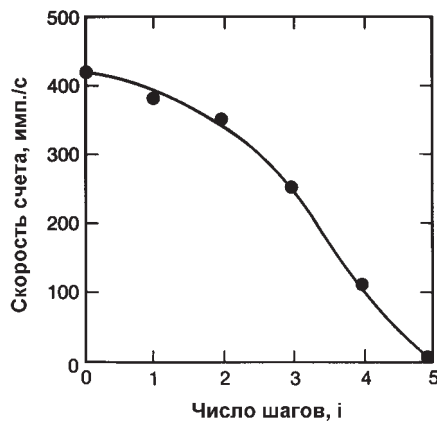


Рис. 20.8. Зависимость отклика коллимированного детектора гамма-излучений от бокового смещения, выражаемого в числе шагов. Отклик спадает вследствие конечного угла обзора коллимированного детектора. По этой кривой могут быть вычислены эквивалентная длина L и эквивалентная площадь A , просматриваемые детектором

Чтобы получить это уравнение, мы представили, что при каждом i -м боковом смещении точечного источника, измеренный отклик является отображением сигнала, который был бы получен для кольца с внутренним радиусом, равным $(i-1/2)s$, и внешним радиусом, равным $(i+1/2)s$. Площадь a_i каждого кольца равна $2i\pi s^2$ за исключением того, что $a_0 = \pi s^2/4$.

5. Если стандартный точечный источник содержит m_0 граммов ядерного материала, то градуировка для отложений в виде точки выглядит следующим образом:

$$m(\text{отложений}) = m_0 \frac{C}{C_0} \frac{r^2}{r_0^2}, \text{ г}, \quad (20.3)$$

где C — наблюдаемая скорость счета, откорректированная на фон;
 r — расстояние между детектором и отложениями;
 m — масса отложений в граммах.

6. Линейная градуировка соответствует массе материала на единицу длины зоны отложений. Выражение для массы имеет вид:

$$m(\text{отложений} / \text{м}) = \frac{m_0}{L} \frac{C}{C_0} \frac{r}{r_0}, \text{ г} / \text{м}. \quad (20.4)$$

C_0 должна измеряться на расстоянии r_0 , используемом для определения L .

7. Градуировка для плоскости соответствует массе материала на единицу площади зоны отложения и имеет следующий вид:

$$m(\text{отложений} / \text{м}^2) = \frac{m_0}{A} \frac{C}{C_0}, \text{ г} / \text{м}^2. \quad (20.5)$$

C_0 должна измеряться на расстоянии r_0 , используемом для определения A .

8. Отметим, что представленные уравнения предполагают, что для определения L , A и C_0 используется один и тот же стандартный образец. На практике это удобно, но не существенно. Для измерений, требующихся для расчета величин L и A по уравнениям (20.1) и (20.2), может использоваться один стандартный образец, а чтобы определить m_0 и C_0 для уравнений с (20.3) по (20.5) может использоваться другой стандартный образец.

20.6.5 Стандартные образцы для градуировки и контрольные источники

В принципе, геометрия стандартного образца, применяемого для градуировки, должна быть такой же, как и геометрия неизвестного образца, подлежащего измерению. Для измерений отложений это часто невыполнимо. Поэтому, на практике для аппроксимации реальных геометрий оборудования используются точечные, линейные и плоские стандартные образцы. Также, как описывалось в предыдущем разделе, для получения градуировок разных геометрий (точка, линия или плоскость) может использоваться один небольшой точечный стандартный образец. Для гамма-измерений достаточно от 1 до 5 г ^{235}U или ^{239}Pu . Даже для этих небольших стандартных образцов самопоглощение гамма-излучения значительно и должно быть учтено поправочным коэффициентом (см., например, табл. 20.5). Для нейтронных измерений плутоний в количестве от 10 до 20 г (от 6 до 20 % ^{240}Pu) дает достаточную скорость счета. В таком нейтронном стандартном образце эффекты самопоглощения и саморазмножения незначительны, но важно установить расчетами или измерениями, что скорость образования нейтронов в стандартном образце представительна для реального материала установки.

Для обеспечения стабильности и надежности работы портативных детекторов излучений в заводских условиях, необходимо использовать их вместе с небольшими контрольными источниками. Работоспособность детекторов должна проверяться с использованием этих источников каждые 1-4 часа. Для этой цели подходят точечные стандартные образцы, описанные в предыдущем абзаце (или даже еще меньшие источники).

Некоторые группы по измерению отложений в дополнение к точечным стандартным образцам для градуировки изготавливают стандартные образцы в виде плоских пластин или слоев. Одна из типичных методик приготовления стандартного образца включает в себя распыление порошков оксидов на прозрачные листы из пластмассы, покрытые клейким материалом [18]. Оксид урана также смешивают с силиконовой резиной и осаждают на пластинах [19]. Стандартные образцы в виде листов могут использоваться для градуировок плоской геометрии или свернуты в трубки или трубопроводы для градуировки линейной геометрии. Однако такие стандартные образцы могут оказаться сложными для изготовления и применения из-за того, что оксид может осаждаться неравномерно и стать жестким, вызывая растрескивание или расслоение материала.

На любой установке могут оказаться специфические геометрии отложений, которые не могут быть аппроксимированы точечными, линейными источниками или источниками в виде плоскости. Иногда возможно имитировать эти геометрии, сочетая точечные стандартные образцы со стандартными образцами в виде листов. Другой альтернативой является введение известных стандартных образцов внутрь реального технологического оборудования, хотя это обычно можно сделать только до введения этого оборудования в эксплуатацию.

20.6.6 Поправки на ослабление и самопоглощение

Обычной проблемой в пассивных гамма-измерениях отложений является тенденция к недооценке количества отложений вследствие самопоглощения в самом материале или ослабления в близлежащих материалах. Самопоглощение гамма-квантов в уране или плутонии может быть очень большим, что показано двумя примерами в табл. 20.5. Хотя аналитик не может точно определить поправку на самопоглощение из-за того, что плотность и распределение материала неизвестны, однако он может сделать приблизительную поправку на самопоглощение при оценке погрешностей.

Ослабление гамма-квантов близлежащими стенками труб, перчаточными боксами или другими материалами можно определить с помощью вычислений или измерений коэффициента пропускания. Измерение коэффициента пропускания показано на рис. 20.9, где источник (обычно ^{137}Cs) размещен позади трубопровода. Процедура измерений, расчет коэффициента пропускания и преобразование его в коэффициент поправки на самоослабление такие же, как в главе 6. Эта процедура редко используется во время кампании по измерению отложений, поскольку она занимает много времени, физически неудобна и требует разнообразной электронной аппаратуры для измерения гамма-пика цезия с энергией 662 кэВ. Вместо этого обычно бывает достаточно провести расчет ослабления, оценив толщину и состав близлежащих материалов.

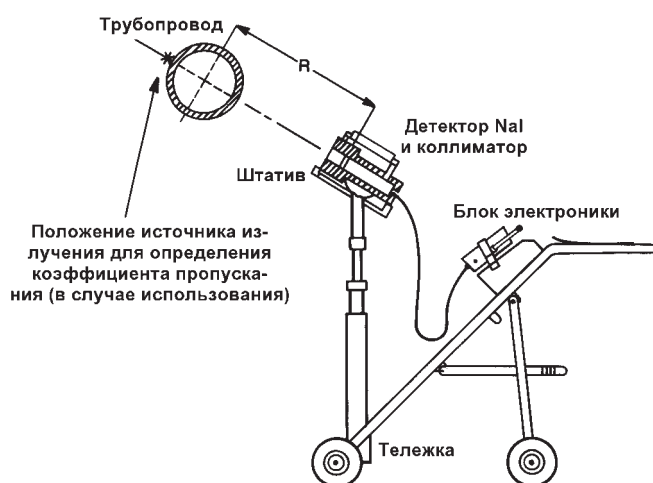


Рис. 20.9. Измерение отложений в трубопроводе. Показано расположение источника излучения пропускания, используемого для измерения поправки на ослабление

Таблица 20.5 – Оцененные поправки на самопоглощение и ослабление для типичных материалов, встречающихся при измерениях отложений

Окружающие материалы	Поправка для гамма-квантов с энергией 186 кэВ	Поправка для гамма-квантов с энергией 414 кэВ
1 г UO ₂ в виде куба	2,95	
10 г UO ₂ в виде куба	5,97	
1 г PuO ₂ в виде куба		1,28
10 г PuO ₂ в виде куба		1,66
Резиновые перчатки	1,05	1,04
0,64 см плексигласа	1,11	1,08
2,54 см воды	1,42	1,30
0,64 см алюминия	1,24	1,18
Фильтр НЕРА размером 20 × 20 см	1,43	1,31
0,16 см стали	1,20	1,12
0,32 см стали	1,44	1,25
0,64 см стали	2,08	1,55
0,16 см свинца	6,83	1,44

В табл. 20.5 представлены примеры коэффициента пропускания гамма-излучения через типичные материалы и связанную с ним поправку на ослабление. Хотя на практике поправка на ослабление является лишь оценкой, очень важно

проводить ее для *каждого* измерения отложений, пока экспериментально не выяснится, где этой поправкой можно пренебречь. В противном случае, результат измерения отложений будет представлять просто нижний предел наличного количества материала.

20.6.7 Оценка погрешности

При оценке погрешностей измерений проявляются как искусство, так и наука измерений отложений. Эти погрешности большие и многочисленные, причины их возникновения изложены ниже в некотором субъективном порядке уменьшения их значимости:

1. Неизвестное распределение материала, которое влияет на выбор расстояния между источником и детектором и на обоснованность выбранной градуировки для точечной, линейной или плоской геометрии.
2. Самопоглощение в материале или матрице материала.
3. Ослабление гамма-излучения в близлежащих материалах.
4. Фон от объектов, удаленных на расстояние прямой видимости, или интерференция от соседнего, неустраненного материала.
5. Нестабильность детектора или неправильная градуировка.
6. Непредставительные стандартные образцы.
7. Статистическая погрешность.
8. Неопределенность в изотопном составе материала.

Статистическая погрешность является единственным источником погрешности, который может быть получен до некоторой степени точно; обычно она незначительна по сравнению с другими погрешностями.

Самой важной методикой для оценки погрешности, доступной группе по измерениям, является методика проведения измерений каждой зоны накопления отложений несколькими различными способами. После того как каждое измерение должным образом откорректировано на расстояние, фон, ослабление и т.п., получают значение количества отложений в граммах, затем следует усреднить различные значения. Стандартное отклонение результатов измерения можно оценить или вычислить, исходя из диапазона значений.

Чтобы оценить точность серии измерений отложений, нужно измерить отложения как до, так и после кампании по зачистке. Если реальное количество удаленного при зачистке материала можно определить отбором проб и последующим химическим анализом или с использованием других методик неразрушающего анализа, то можно вычислить погрешность измерения. Данные предшествующих градуировок можно обновить, а оценки погрешностей пересмотреть.

В табл. 20.6 представлено краткое изложение опубликованных сравнительных данных по измерениям отложений и кампаниям по зачистке на существующих установках. Из этих данных можно оценить общую погрешность измерений отложений. В основном, погрешность измерений отложений составляет $\pm 50\%$, хотя для более удобных геометрий или тщательно контролируемых кампаний по измерениям можно получить более точные результаты.

Таблица 20.6 – Типичная точность измерений отложений

Литература	Материал	Место расположения	Методика измерений	Погрешность (±), %
19	Оксид ВОУ	Трубопроводы	Пассивные гамма-измерения	10-20
		Фильтры	Пассивные гамма-измерения	50-100
23	PuO ₂	Перчаточные боксы	Пассивные гамма-измерения	10
			Пассивные нейтронные измерения	15
24	PuO ₂	Перчаточные боксы	Пассивные гамма-измерения	50
		Все помещение	Пассивные нейтронные измерения	50
26	PuO ₂	Перчаточные боксы	ТЛД	20
14	Оксид ВОУ	Трубопроводы	Пассивные гамма-измерения	20
		Установки по осаждению	Пассивные гамма-измерения	15
		Печи для прокаливания	Пассивные гамма-измерения	20
		Трубы	Пассивные гамма-измерения	10
		Насосы	Пассивные гамма-измерения	25
28	UF ₆	Обогатительный каскад	Пассивные гамма-измерения	50

ЛИТЕРАТУРА

1. D. Rogers, Ed., *Handbook of Nuclear Safeguards Measurement Methods*, NUREG/CR-2078 (US Nuclear Regulatory Commission, Washington, DC, 1983).
2. M. Anderson and J. Lemming, "Selected Measurement Data for Plutonium and Uranium," Mound Laboratory report MLM-3009 (1982).
3. T. Crane, "Measurement of Uranium and Plutonium in Solid Waste by Passive Photon or Neutron Counting and Isotopic Neutron Source Interrogation," Los Alamos Scientific Laboratory report LA-8294-MS (1980).

4. T. Crane, "Versatile System for Measuring Nuclear Waste in 55-Gal. Drums," in "Safeguards and Security Status Report, February – July 1983," J. Shipley and D. Smith, Eds., Los Alamos National Laboratory report LA-9595-PR (1983), pp. 24-29.
5. J. Caldwell, D. Close, T. Kuckertz, W. Kunz, J. Pratt, K. Haff, and F. Schultz, "Test and Evaluation of a High-Sensitivity Assay System for Bulk Transuranic Waste," *Nuclear Materials Management* XII, 75 (1984).
6. D. Close, T. Crane, J. Caldwell, W. Kunz, E. Shunk, J. Pratt, L. Franks, and S. Kocinski, "Advances in Measurement of Alpha-Contaminated Wastes," *Proc. American Nuclear Society Topical Meeting on the Treatment and Handling of Radioactive Waste*, Richland, Washington, April 19-22, 1982, p. 292.
7. C.A. Coulter, "Safeguards Uses of Confirmatory Measurements," Proceedings of the Inst. of Nuclear Mat. Manage., Albuquerque, New Mexico (July 1985).
8. R.S. Marshall, R.P. Wagner, and F. Hsue, "Experience with Confirmation Measurement at Los Alamos," LA-UR-85-2667, Proceedings of the Inst. of Nuclear Mat. Manage., Albuquerque, New Mexico (July 1985).
9. H. Menlove, "Passive/Active Assay of PuF₄ and (α,n) Salts," Los Alamos National Laboratory memorandum Q-1-84-161 to N. Ensslin (February 1984).
10. H. Menlove and A. Keddar, "Field Test and Evaluation of the Passive Neutron Coincidence Collar for Prototype Fast Reactor Fuel Subassemblies," Los Alamos National Laboratory report LA-9449-MS (1982).
11. J. Cadieux, C. Denard, and P. Deason, "Confirmatory Measurement Experiences at the Savannah River Plant," Proceedings of the Inst. of Nuclear Mat. Manage., Albuquerque, New Mexico (July 1985).
12. J. Gilmer, "Confirmatory Measurements Counter for Shipper-Receiver Verification," Proceedings of the Inst. of Nuclear Mat. Manage., Albuquerque, New Mexico (July 1985).
13. NRC Regulatory Guide 5.23, "In-Situ Assay of Plutonium Residual Holdup," Rev. 1 (February 1984).
14. K.K.S. Pillay, R. Picard, and R. Marshall, "Estimation Methods for Process Holdup of Special Nuclear Materials," NUREG/CR-3678, LA-10038 (June 1984).
15. NRC Regulatory Guide 5.8, "Design Considerations for Minimizing Residual Holdup of Special Nuclear Material in Drying and Fluidized Bed Operations" (May 1974).
16. NRC Regulatory Guide 5.25, "Design Considerations for Minimizing Residual Holdup of Special Nuclear Material in Equipment for Wet Process Operations" (June 1974).
17. NRC Regulatory Guide 5.42, "Design Considerations for Minimizing Residual Holdup of Special Nuclear Material in Equipment for Dry Process Operations" (January 1975).
18. M. Zucker and M. Degen, "Holdup Measurement for Nuclear Fuel Manufacturing Plants," *Nuclear Materials Management* X, 239 (1981).
19. B. Disselhorst, J. Glancy, and D. Brush, "Survey Techniques for Measuring ²³⁵U," General Atomic Company report GA-A14426 (1977).

20. N. Ensslin and E. Sanford, "An Active Neutron Holdup Measurement Technique," in "Program Status Report, Safeguards and Security Research and Development, February – July 1981," Los Alamos National Laboratory report LA-9110-PR (1982), pp. 13-15.
21. NRC Regulatory Guide 5.37, "In-Situ Assay of Enriched Uranium Residual Holdup," Rev. 1 (October 1983).
22. J. Lawless, "The Rocky Flats Assay Meter," Rockwell International, Rocky Flats Plant report SSS-81-1(1981).
23. C. Kindle, "In-Situ Measurement of Residual Plutonium," *Nuclear Materials Management V* (3), 540 (1976).
24. J. Tape, D. Close, and R. Walton, "Total Room Holdup of Plutonium Measured with a Large-Area Neutron Detector," *Nuclear Materials Management, V* (3), 533 (1976).
25. T. Crane, "Richland/Hanford PUREX: Screw Calciner Holdup Monitor," in "Safeguards and Security Progress Report, January – December 1983," Los Alamos National Laboratory report LA-10170 (1984), p. 16.
26. H. Preston and W. Symons, "The Determination of Residual Plutonium Masses in Gloveboxes by Remote Measurements Using Solid Thermoluminescent Dosimeters," United Kingdom AEA report AEEW-R1359, Winfrith, England (1980).
27. R. Marshall, N. Ensslin, R. Picard, and R. Siebelist, "Summary Report on Uranium Holdup Estimation," Los Alamos National Laboratory document Q-4/82-489, p. 66, April 1982.
28. R. Walton, "The Feasibility of NDA Measurements in Uranium Enrichment Plants," Los Alamos Scientific Laboratory report LA-7212-MS (1978).

Глава 21

Принципы калориметрического анализа

Р. Лайкс
(Переводчик П.И. Самарин)

21.1 ВВЕДЕНИЕ

Калориметрия — это количественное измерение теплоты. Она измеряет передачу энергии от одной системы к другой, вызываемую разностью температур. Применения калориметрии включают измерения удельных теплоемкостей твердых тел и жидкостей, теплоты парообразования и горения, тепловой мощности радионуклидов. В последнем из упомянутых измерений используются радиометрические калориметры. Они специально сконструированы для измерения энергии, связанной с альфа-, бета- и гамма-распадом радиоактивных материалов. Данный метод был предложен впервые в 1903 г. для определения теплоты, создаваемой радием.

Методы калориметрии в настоящее время применяются для высокоточного пассивного неразрушающего анализа ядерных материалов, особенно плутония и трития. В данной главе рассматривается калориметрический анализ плутония. Важные отличительные особенности и преимущества калориметрического анализа приведены ниже [1, 2]:

- а) может быть проведено измерение для всего образца;
- б) анализ не зависит от геометрии образца (она оказывает влияние только на время достижения равновесного состояния);
- в) анализ не зависит от состава материала матрицы и распределения материала, включая номинальное содержание влаги;
- г) анализ не зависит от распределения ядерного материала в образце, включая эффекты самоослабления в образце;
- д) измерения электрического тока и разности потенциалов осуществляются непосредственно с использованием эталонных материалов Национального бюро стандартов США;
- е) калориметрический анализ позволяет в большинстве случаев различать между собой изотопы урана и плутония (только плутоний может быть проанализирован);
- ж) калориметрический анализ может применяться для разнообразных форм материалов (включая металлы, сплавы, оксиды, фториды, смешанные оксиды, отходы и скрап), причем нет необходимости в представительных стандартных образцах плутония;
- з) калориметрический анализ по точности сравним с химическим анализом, если хорошо известен изотопный состав измеряемого материала;

и) калориметрический анализ представляет собой комплексную процедуру неразрушающего анализа при сочетании со спектрометрическим изотопным анализом гамма-излучения с высокой разрешающей способностью.

Калориметрический анализ основан на точных измерениях температуры и требует хорошей температурной стабильности и управления. В общем этот метод более точен, но менее оперативен или в меньшей степени компактен, чем другие методы неразрушающего анализа, описанные в этой книге. Он часто обеспечивает точные эталонные измерения для улучшения градуировки других методов анализа, таких, например, как метод регистрации нейтронных совпадений [3].

Калориметрический анализ наиболее точен для материалов с высокими концентрациями плутония, таких как порошки, топливные таблетки и металлы. Калориметры широко используются для учета ядерных материалов и для подтверждающих измерений при передаче ядерных материалов от отправителя к получателю. При применении калориметрии для концентрированных, однородных содержащих плутоний материалов результаты измерений имеют погрешность, сопоставимую с погрешностью результатов взвешивания с химическим анализом, приближающейся к 0,1 %. Для скрапа высокой плотности калориметрия со спектрометрией гамма-излучения может обеспечить погрешность до 1 %, если скрап имеет однородный изотопный состав.

В этой главе рассматриваются принципы тепловыделения, определения удельной теплоты, типы калориметров, методы работы и основные источники погрешности анализа. В следующей 22-й главе описываются существующие калориметры различных типов, включая небольшие калориметры для применения в лабораториях и калориметры для анализа материалов в балк-форме на заводах-изготовителях.

21.2 ВЫРАБОТКА ТЕПЛОТЫ РАДИОИЗОТОПАМИ

Энергия, связанная с самопроизвольным распадом радиоактивных изотопов, состоит из кинетической энергии испускаемых альфа- и бета-частиц, электромагнитной энергии гамма-излучения и энергии отдачи дочернего продукта, которые в совокупности называются энергией распада изотопа. Если дочерний продукт не находится в основном состоянии после распада, то при переходе дочернего продукта в основное состояние будет выделяться дополнительная энергия гамма-излучения и электронов внутренней конверсии. Каждый радиоактивный изотоп имеет определенную энергию распада, связанную с конкретной схемой распада, например, ^{239}Pu распадается по схеме $^{239}\text{Pu} \rightarrow ^{235}\text{U} + \text{альфа-частица} + 5,15 \text{ МэВ}$.

Радиометрические калориметры работают на том принципе, что почти вся энергия, связанная с распадом радиоактивных материалов, находящихся в измерительной камере, поглощается в форме теплоты внутри калориметра. При радиоактивном распаде всех изотопов урана и плутония вырабатывается теплота, но только изотопы плутония из-за их более коротких периодов полураспада и, тем самым, более высокой удельной активности генерируют теплоту с достаточно высокой мощностью, чтобы выполнить точное измерение. Большая часть энергии распада плутония высвобождается в виде альфа- и бета-частиц и преобразуется в тепловую энергию посредством поглощения. Небольшая часть энергии уходит с нейтронами и гамма-квантами, однако эта часть в общей сложности составляет менее 0,01 % полной энергии распада [1].

Калориметрический анализ плутония представляет собой процесс измерения калориметром скорости нагрева материала при радиоактивном распаде плутония и определения аналитического коэффициента связи тепловой мощности и массы плутония. В этом разделе подробно описывается образование теплоты в плутонии. Раздел 21.3 описывает расчеты, необходимые для определения удельной мощности – коэффициента, который связывает измерение тепловой мощности с массой плутония.

21.2.1 Альфа-частицы

При радиоактивном распаде изотопов плутония преобладающим является альфа-распад. Механизмом, с помощью которого такие тяжелые частицы, как альфа-частицы, передают свою кинетическую энергию окружающему материалу, обычно является ионизация. Проникая в материал, альфа-частица претерпевает большое количество столкновений до потери всей своей первоначальной энергии, так что на каждое последующее столкновение приходится все меньшее количество энергии. Эти небольшие потери энергии находятся в диапазоне инфракрасного излучения, т.е. представляют собой тепловую энергию.

Пробег альфа-частиц в различных материалах относительно их пробега в воздухе можно определить по правилу Брэгга-Климана (уравнение (11.2) в главе 11). Пробег альфа-частиц с энергией 5-6 МэВ в наиболее распространенных материалах составляет около 5 мкм. Таким образом, фактически почти вся энергия, высвобождаемая при альфа-распаде, будет поглощаться в образце в виде тепла.

21.2.2 Бета-частицы

В случае бета-распада или захвата электронов определение потерь энергии в материале является намного более сложным, чем при альфа-распаде. Кроме бета-распада происходит ряд конкурирующих процессов: ионизация, тормозное излучение, образование нейтрино и эмиссия электронов конверсии. Энергия, потерянная непосредственно в поглотителе в виде тепла, составляет в среднем одну треть максимальной энергии бета-распада определенного радиоизотопа. Остальная часть энергии не участвует в измерениях теплоты.

Основным механизмом потерь энергии бета-частицами низких и средних энергий в веществе является ионизация. Тормозное излучение является преобладающим для бета-частиц высоких энергий, если их кинетическая энергия превышает массу покоя (511 кэВ). Потеря энергии при ионизации пропорциональна атомному номеру Z поглощающего материала и возрастает с энергией по логарифмической зависимости. Энергетические потери, обусловленные тормозным излучением, пропорциональны Z^2 и линейно возрастают с энергией. Из этого следует, что при высоких энергиях частиц преобладают потери энергии за счет тормозного излучения. Длина пробега излучения определяется как путь в поглотителе, после которого энергия электрона составляет $1/e$ от первоначальной энергии. Для электрона с энергией 2 МэВ типичная длина пробега излучения в оксиде плутония составляет несколько миллиметров.

Каждая бета-частица сопровождается возникновением нейтрино, которое несет часть энергии распада. Нейтрино обладает исключительно высокой проникающей способностью по отношению к веществу, поэтому часть энергии распада при бета-излучении не поглощается в объеме образца.

Испускание электронов конверсии является механизмом, альтернативным снятию возбуждения ядер путем испускания гамма-квантов. Энергия электронов конверсии может быть передана окружающему материалу за счет ионизации или тормозного излучения.

21.2.3 Гамма-кванты

Распад радиоизотопа с испусканием таких частиц, как альфа- или бета-частицы, обычно сопровождается возбужденным состоянием дочернего ядра. Избыточная энергия дочернего ядра выделяется посредством испускания гамма-квантов, электронов внутренней конверсии или образованием электронно-позитронных пар. Из этих процессов преобладающим является испускание гамма-квантов. Гамма-кванты, испускаемые ядерными материалами, обычно имеют энергию от долей МэВ до нескольких МэВ. В этом диапазоне гамма-кванты обычно взаимодействуют с веществом посредством фотоэффекта, комптоновского рассеяния или образования пар. Если эти взаимодействия не происходят внутри образца, то энергия, связанная с испусканием гамма-квантов высоких энергий, не остается в калориметре. Как указывалось ранее, эта потерянная энергия составляет небольшой процент от полной энергии распада изотопов плутония.

21.2.4 Другие виды излучений

Помимо первичных альфа-, бета-, гамма-излучений радиоизотопы излучают также нейтроны в процессе спонтанного деления. Потеря энергии за счет нейтронного излучения на много порядков меньше полной энергии распада.

Другими возможными источниками тепла являются химические реакции, как, например, окисление, и радиохимические процессы, связанные с продуктами деления при процессах переработки. Возможные погрешности от таких источников могут быть оценены с использованием гамма-спектрометрии для обнаружения продуктов деления, наблюдением за любой временной зависимостью мощности излучения или сравнением калориметрии с другими методиками [7].

21.3 ОПРЕДЕЛЕНИЕ УДЕЛЬНОЙ МОЩНОСТИ

21.3.1 Определение удельной мощности

Каждый радиоизотоп распадается с постоянной средней скоростью λ (распад/с) и освобождением энергии Q (МэВ). Скорость освобождения энергии для конкретного изотопа определяется соотношением

$$W = QN\lambda, \text{ МэВ}, \quad (21.1)$$

где N — число радиоактивных атомов, $N = N_0 \cdot m/A$;

N_0 — число Авогадро;

m — масса радиоизотопа, г;

A — атомная масса изотопа, г.

С учетом того, что $\lambda = 0,6931/T_{1/2}$, где $T_{1/2}$ – период полураспада изотопа в годах, мощность в ваттах, измеряемая калориметром, определяется выражением [2]

$$W = 2119,3Q_m / T_{1/2}A, \text{ Вт.} \quad (21.2)$$

Если полная энергия, выделяемая за единицу времени, может быть собрана в калориметре и точно измерена, а также известны энергия распада, период полураспада и атомная масса, то может быть определена масса образца. Уравнение (21.1) также показывает, что тепловая мощность, выделяемая в калориметре при радиоактивном распаде прямо пропорциональна массе изотопа:

$$W = Pm. \quad (21.3)$$

Постоянная пропорциональности P – это удельная тепловая мощность данного изотопа, измеренная в ваттах на грамм изотопа. Удельная мощность одного изотопа может быть рассчитана из уравнения (21.2), если известны соответствующие параметры (расчетный метод), или она может быть определена экспериментально с помощью уравнения (21.3) (экспериментальный метод). Процедуры для расчетного и экспериментального методов подробно рассмотрены в работе [4].

Значения удельной тепловой мощности и другие ядерные константы изотопов плутония сведены в табл. 21.1 [4]. Следует отметить, что удельная мощность ^{238}Pu значительно превышает (почти в 250 раз) мощность ^{239}Pu из-за более короткого периода полураспада. Удельная мощность ^{241}Am также значительно больше мощности ^{239}Pu , поэтому содержание ^{241}Am во время калориметрического анализа имеет весьма важное значение. Содержание ^{241}Am со временем возрастает, так как ^{241}Am образуется при бета-распаде ^{241}Pu и поэтому тепловая мощность плутониевого образца также возрастает со временем. В процессе распада ^{241}Pu до ^{241}Am как материнские, так и дочерние ядра вносят свой вклад в полную мощность. Вклад ^{241}Am в полную мощность описывается уравнением (21.11), помещенным в конце раздела 21.3.2.

Таблица 21.1 – Значения удельной мощности для изотопов плутония [4]

Радио-изотоп	Освобождаемая при распаде энергия Q , МэВ	Основной тип распада	Период полураспада $T_{1/2}$, лет	Удельная мощность, мВт/г	Стандартное отклонение удельной мощности, мВт/г
^{238}Pu	5,592	Альфа	87,74	567,57	0,26
^{239}Pu	5,243	Альфа	24 119	1,9288	0,0003
^{240}Pu	5,255	Альфа	6 564	7,0824	0,002
^{241}Pu	0,0055	Бета	14 348	3,412	0,002
^{242}Pu	4,985	Альфа	376 300	0,1159	0,0003
^{241}Am	5,640	Альфа	433,6	114,2	0,42

21.3.2 Эффективная удельная мощность

Так как реальные образцы плутония содержат разные количества различных изотопов, приведенных в табл. 21.1, то полная мощность является суммой мощностей каждого изотопа:

$$W = \sum_{i=1}^n m_i P_i, \quad (21.4)$$

где m_i — масса i -го изотопа;
 P_i — удельная мощность i -го изотопа;
 n — число всех изотопов плутония и ^{241}Am .

Если R_i определить как массовую долю m_i/M для i -го изотопа, где M есть суммарная масса изотопов плутония, то

$$W = M \sum_{i=1}^n P_i R_i. \quad (21.5)$$

Для calorиметрического анализа важным фактором является эффективная удельная мощность $P_{\text{эфф}}$, выражаемая в ваттах на грамм плутония и определяемая соотношением

$$P_{\text{эфф}} = \sum_{i=1}^n P_i R_i. \quad (21.6)$$

В единицах эффективной мощности суммарная масса всех изотопов плутония задается выражением

$$M = W / P_{\text{эфф}}. \quad (21.7)$$

Масса каждого конкретного изотопа равна

$$m_i = R_i W / P_{\text{эфф}}. \quad (21.8)$$

Для проведения точных calorиметрических анализов должны быть очень хорошо известны значения эффективной удельной мощности образца. Эффективная удельная мощность может быть определена либо экспериментальным, либо расчетным методом [4]:

а) *Экспериментальный метод.* Экспериментальный метод определения эффективной удельной мощности хорошо подходит для дискретных партий исследуемых материалов, когда применение расчетного метода затруднительно из-за недостаточно хорошо известной распространенности изотопов ^{238}Pu и ^{241}Am . Этот метод требует проведения как химического, так и calorиметрического анализа образца. Calorиметрический анализ определяет полную мощность, создаваемую образцом, а химический анализ — суммарное количество ядерного материала в образце. Затем для расчета эффективной удельной мощности может быть использовано уравнение (21.7).

б) *Расчетный метод.* Расчетный метод определения эффективной удельной мощности пригоден в случае, когда может быть произведено очень точное определение содержания изотопов. Если может быть измерено содержание изотопа R_i и

для каждого изотопа известны величины удельной мощности P_i , то по уравнению (21.6) может быть рассчитана эффективная удельная мощность для данной смеси изотопов.

Относительное содержание изотопов может быть определено неразрушающими методами гамма-спектрометрии (см. главу 8) или разрушающими методами масс-спектрометрии [5, 6]. Разрушающие методы должны включать методику определения содержания изотопа ^{241}Am . Содержание изотопа ^{238}Pu предпочтительнее измерять с использованием альфа-спектрометрии [4].

Массовые доли изотопов должны быть точно известны и откорректированы по их периодам полураспада на дату измерения мощности калориметром, так как эффективная удельная мощность зависит от времени. Поправка на распад изотопа может быть произведена либо посредством определения кривой нарастания мощности образца за период по крайней мере в 30 дней, либо расчетом поправки по ранее определенному изотопному составу. Согласно публикации [4], если используется метод кривой нарастания мощности, то должны быть известны "минимум три точки для построения прямой линии, показывающей зависимость мощности от времени. Эта зависимость должна быть дополнительно проконтролирована еще через 30 дней".

Поправка на распад изотопа, основывающаяся на расчете по ранее измеренному содержанию изотопа, обычно является самым легким подходом, как показано в уравнении (21.9):

$$W = M \sum_{i=1}^n P_i R_i(t). \quad (21.9)$$

Уравнение (21.9) аналогично уравнению (21.5) за исключением того, что $R_i(t)$ выражает зависимость массовых долей от времени. Для изотопов плутония

$$R_i(t) = R_i(t_1) \exp[-\lambda_i(t - t_1)] / F(t), \quad (21.10)$$

где $R_i(t)$ — массовая доля i -го изотопа плутония в момент времени t ;

t_1 — время проведения изотопного анализа плутония;

λ_i — постоянная распада i -го изотопа плутония;

$F(t) = \sum_{i=1}^{n-1} R_i(t_1) \exp[-\lambda_i(t - t_1)]$ суммируется только по изотопам плутония.

Для дочерних ядер ^{241}Am массовая доля обусловлена как распадом изотопа ^{241}Am , так и накоплением за счет бета-распада изотопа ^{241}Pu :

$$R_A = \frac{F(t_A)}{F(t)} R_A(t_A) \exp\{-\lambda_A(t - t_A)\} + K_1 K_2 \frac{R_1(t_1) \lambda_1 \exp[-\lambda_1(t_A - t_1)]}{F(t) (\lambda_i - \lambda_A)} \{\exp[-\lambda_A(t - t_A)] - \exp[-\lambda_1(t - t_A)]\} \quad (21.11)$$

где $R_1(t_1)$ — массовая доля изотопа ^{241}Pu , определенная в момент времени t_1 ;

$R_A(t)$ — массовая доля изотопа ^{241}Am относительно всего плутония в момент времени t ;

t_A — время проведения анализа америция;

λ_A — постоянная распада изотопа ^{241}Am ;

λ_1 — постоянная распада изотопа ^{241}Pu ;
 $K_1 = 0,9999754$ вероятность распада ^{241}Pu с образованием ^{241}Am ;
 $K_2 = 0,999999905$ отношение массовых чисел ^{241}Am к ^{241}Pu .

И, наконец, если полная масса плутония известна на какой-то момент времени t_m , то его масса на любой момент времени в будущем составляет

$$m(t) = m(t_m)F(t) / F(t_m). \quad (21.12)$$

21.4 ИЗМЕРЕНИЕ ТЕПЛОТЫ С ПОМОЩЬЮ КАЛОРИМЕТРА

Калориметр содержит контейнер, в котором исследуется тепловой эффект, и датчик температуры. В общем случае контейнер связан с окружающей средой стенками, которые имеют некоторое тепловое сопротивление. Основные элементы калориметра показаны на рис 21.1 [7]. Теплота, выделяемая во внутренней полости контейнера, повышает его температуру и создает тепловой поток через тепловое сопротивление в окружающую среду в соответствии с уравнением (21.13):

$$\frac{dQ}{dt} = k(T_{\text{кал}} - T_{\text{окр}}), \quad (21.13)$$

где Q — тепловая энергия;

k — теплопроводность;

$T_{\text{кал}}$ — внутренняя температура калориметра;

$T_{\text{окр}}$ — температура внешней окружающей среды.

В зависимости от величины этого теплообмена калориметр может быть классифицирован как адиабатический или изотермический.

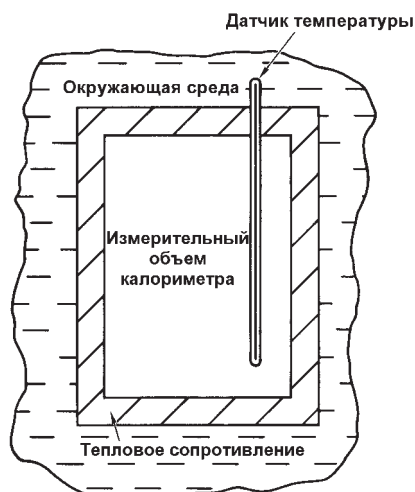


Рис. 21.1. Основными элементами калориметра являются его измерительный объем или внутренняя полость, датчик температуры, теплоизолирующий зазор и окружающая среда

21.4.1 Адиабатические калориметры

В общем случае калориметры проектируются с большим тепловым сопротивлением между полостью контейнера и окружающей его внешней средой. В результате этого почти все тепло, производимое в калориметре, сохраняется, вызывая повышение его температуры. Измеряя повышение температуры ΔT , можно определить количество выделяемой тепловой мощности по формуле $Q = C \cdot \Delta T$, где C — теплоемкость. Если источник теплоты имеет постоянную скорость тепловыделения, то внутренняя температура будет также повышаться с постоянной скоростью. Если источник теплоты конечен, то внутренняя температура калориметра достигнет некоторого определенного уровня.

Эффективный тип адиабатического калориметра — это калориметр, спроектированный таким образом, чтобы $T_{\text{окр}}$ постоянным регулированием соответствовала $T_{\text{кал}}$, так чтобы скорость теплопередачи равнялась нулю $dQ/dt = 0$. Это осуществляется с помощью регулятора, который реагирует на любую разность двух температур. Адиабатические калориметры наиболее пригодны для изучения таких процессов, как, например, химические реакции, для которых важно измерять выделение полного суммарного количества теплоты. Адиабатические калориметры не используются для анализа радионуклидов, так как их внутренняя температура может продолжать повышаться бесконечно долго.

21.4.2 Изотермические калориметры

Если тепловое сопротивление между полостью для образца и окружающей средой мало, то теплота, создаваемая в калориметре, передается окружающей среде. Для образца, вырабатывающего теплоту с постоянной скоростью, система в целом достигнет равновесия, при котором скорость теплопередачи в окружающую среду равна скорости образования теплоты в образце. Скорость теплопередачи прямо пропорциональна разности температур между полостью для образца и окружающей средой, как описано в уравнении (21.13), в котором теплопроводность k зависит от длины пробега теплового излучения, материала и формы поверхности. Важно, чтобы величина k оставалась постоянной, так как измерение скорости теплопередачи по-прежнему представляет собой точное измерение температуры. Величина k определяется для данного калориметра градуировкой.

Калориметр классифицируется как изотермический, если в полости для образца поддерживается постоянная температура. Если же калориметр спроектирован таким образом, что устанавливается постоянный перепад температур между полостью для образца и окружающей средой, то он классифицируется как калориметр теплового потока.

Радиометрические калориметры, которые спроектированы для калориметрического анализа радиоактивных изотопов, являются обычно калориметрами теплового потока, так как образцы плутония излучают теплоту при почти постоянном уровне тепловой мощности вследствие спонтанного распада радиоактивных изотопов. Различные типы калориметров, используемые для анализа плутония и описанные в следующем разделе, являются калориметрами теплового потока.

21.5 ТИПЫ КАЛОРИМЕТРОВ ТЕПЛООВОГО ПОТОКА

Хотя калориметрический анализ плутония обычно выполняется калориметром теплового потока, нет универсальной конструкции калориметра, пригодной для всех задач. Каждая система обычно создается по требованиям заказчика с учетом множества технических характеристик, описанных в разделе 22.1.2 главы 22. В зависимости от конкретных требований окончательная конструкция прибора может совмещать отличительные особенности одного или нескольких типов калориметров, описанных в этом разделе: двухэлементного мостового, мостового с верхней/нижней камерами и градиентного мостового.

21.5.1 Общие электрические характеристики

Одной отличительной особенностью современных калориметров является точное измерение температуры электрическими средствами. Определение общей тепловой мощности образца основано на электрическом измерении разницы температур между камерой для образца и внешним теплоотводом или эталонной камерой.

В двухэлементных калориметрах камера для образца и эталонная камера содержат две обмотки из никелевой проволоки, сопротивление которых является функцией температуры. Четыре обмотки образуют мост Уитстона с перекрещенными плечами и подключены к источнику постоянного тока, как показано на рис 21.2 [7]. При такой схеме разность температур между камерой для образца и эталонной камерой прямо пропорциональна потенциалу моста BP .

При отсутствии образца в калориметре можно наблюдать небольшой потенциал моста BP_0 (микровольты) из-за различий сопротивлений никелевых обмоток. Когда образцовый электрический источник теплоты или радиоизотопный источник теплоты, выделяющий мощность на уровне W_R ватт помещается в камеру для образца, то мост уравнивается при потенциале BP_R (мкВ). Чувствительность S калориметра, выраженная в микровольтах на ватт, составляет:

$$S = (BP_R - BP_0)W_R, \text{ мкВ/Вт.} \quad (21.14)$$

21.5.2 Полные мостовые двухэлементные калориметры

Для повышения точности почти все калориметры могут быть построены как двухэлементные калориметры. Наиболее типичным примером является изотермический двухэлементный мостовой калориметр, разработанный Маундской лабораторией и широко используемый для анализа в заводских условиях [8]. На рис 21.3 показано поперечное сечение калориметра этого типа, а на рис 21.4 представлен снимок полного двухэлементного мостового калориметра без окружающей его водяной ванны.

Конструкция полного двухэлементного мостового калориметра состоит из двух одинаковых тепловых элементов — камеры для образца и эталонной камеры, каждая из которых отделена от внешней стенки воздушным зазором или зазором из твердого вещества, служащим в качестве теплового сопротивления. Каждый тепловой элемент имеет провода нагревателя, обмотанные вокруг камеры для выполнения градуировки. Потери тепла вдоль оси камеры сводятся к минимуму за счет использования пластмассовых концевых колпачков с отражателями из сти-

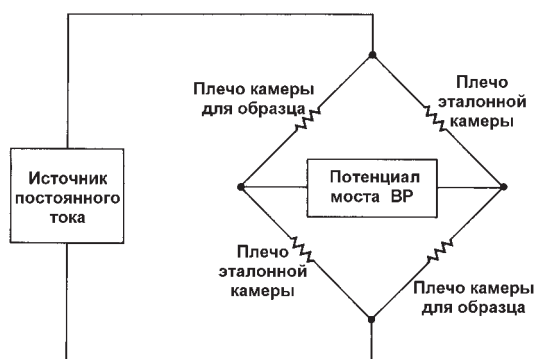


Рис. 21.2. Мост Уитстона, используемый для точного измерения разности температур между камерой для образца и эталонной камерой калориметра

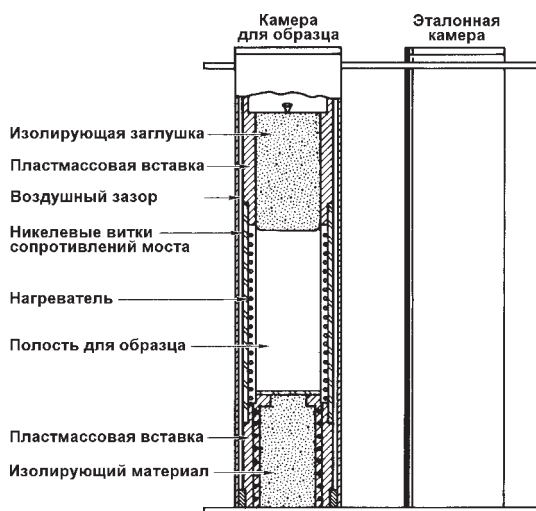


Рис. 21.3. Поперечное сечение типичного изотермического калориметра с двумя идентичными тепловыми камерами: для образца и эталона

роформа (теплоизолирующего пенопласта) и металлическими пластинами для обеспечения теплопередачи от образца к стенкам калориметра. Два резистивных термометра из тонкой никелевой проволоки намотаны по всей длине каждого теплового элемента для обеспечения точного измерения температуры независимо от изменений теплового потока [8].

Во время работы двухэлементный калориметр погружен в водяную ванну, температура которой поддерживается постоянной с точностью до миллиградуса. Кроме того, использование двух одинаковых тепловых элементов создает дифференциальный сигнал, который в 10-100 раз более стабилен, чем сигнал для внешней ванны. Когда образец помещается в камеру, температура повышается до тех пор, пока потери тепла через никелевые обмотки, тепловой зазор и внешний кожух к водяной ванне не станут равными теплоте, генерируемой образцом. При достижении этого равновесия разность температур, измеряемая с помощью потенциала моста, пропорциональна количеству генерируемой теплоты. Точные калориметры теплового потока этого типа проектируются и создаются таким образом, чтобы тепловые пути между камерой для образца и окружающей средой оставались постоянными. Дополнительного внимания заслуживает поддержание по-

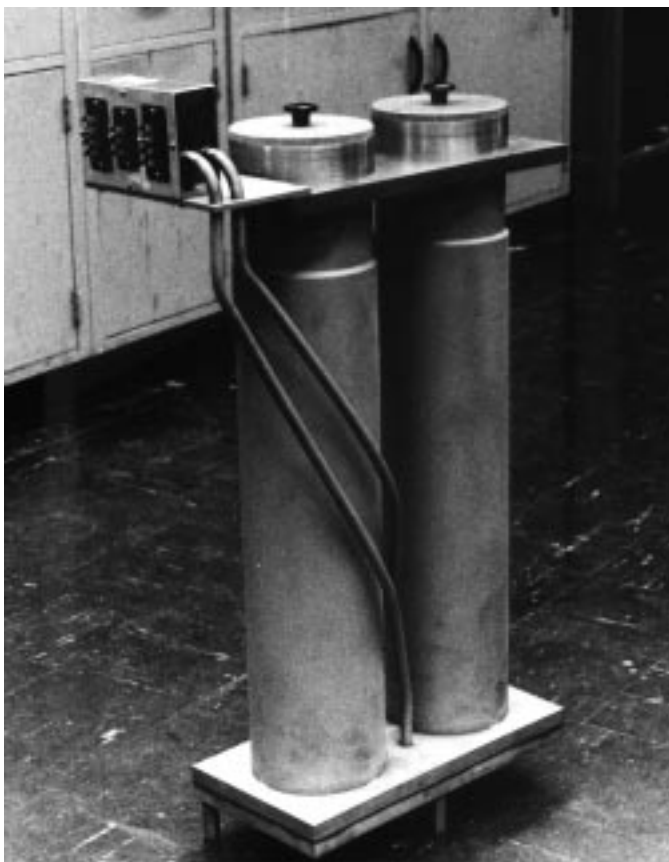


Рис. 21.4. Общий вид двух-элементного мостового калориметра без окружающей водяной ванны

стоянной температуры окружающей среды и минимизация погрешности в тепловом распределении, связанной с расположением образца в камере.

Двухэлементный мостовой калориметр обеспечивает наибольшую точность, надежность, чувствительность и долговременную стабильность при измерениях тепловой мощности вследствие внутренней компенсации многих тепловых эффектов. Однако наличие двух тепловых элементов и внешней водяной ванны приводит к тому, что этот измерительный прибор больше по размерам и требует большего пространства для размещения, чем калориметры других конструкций. Двухэлементные мостовые калориметры предназначены для образцов с диаметром от 1 до 30,5 см. Верхний предел определяется только нормами ядерной безопасности, а нижний предел — от 0,1 до 0,2 г ^{239}Pu на литр [8]. Применение двухэлементного мостового калориметра описано в разделе 22.4.1 главы 22.

21.5.3 Мостовые калориметры с верхней/нижней камерами

В конструкции калориметра с верхней/нижней камерами камера для образца устанавливается над несколько укороченной эталонной камерой [7], как показано на рис 21.5. Обе камеры размещаются в одном изотермическом водяном кожухе, который меньше, чем внешняя ванна, используемая в двухэлементном калориметре. Конструкция с верхней/нижней камерами требует меньшего пространства для установки, но она несколько выше. Конструкция с верхней/нижней ка-

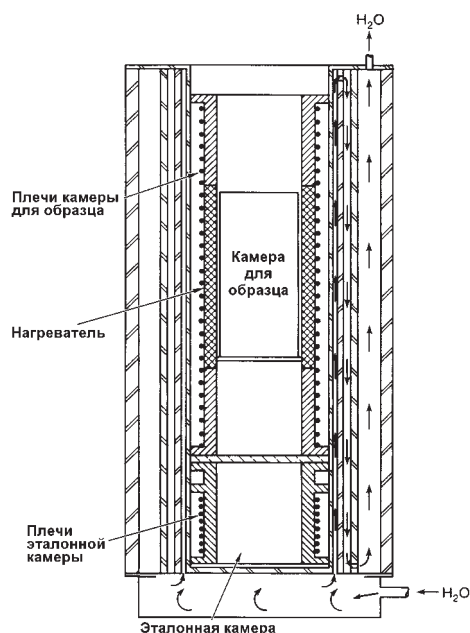


Рис. 21.5. Передвижной мостовой калориметр с верхней/нижней камерами с тонкой водяной рубашкой, в котором камера для образца расположена над эталонной камерой

мерами может также использоваться для создания передвижного калориметра. Калориметр, показанный на рис 21.5, может быть установлен на подвижной тележке вместе с циркуляционной ванной.

Конструкция мостового калориметра с верхней/нижней камерами имеет преимущество по габаритам и стоимости перед двухэлементной конструкцией и обеспечивает устранение некоторых тепловых эффектов. Однако точность такого калориметра не настолько высока, как у полного двухэлементного мостового калориметра. Примеры мостовых калориметров с верхней/нижней камерами приведены в разделах 22.3.1 и 22.4.2 главы 22.

21.5.4 Градиентный мостовой калориметр

Градиентный мостовой калориметр (рис 21.6) состоит из ряда концентрических цилиндров, при этом цилиндр камеры для образца находится внутри цилиндра эталонной камеры [7]. Зазор между цилиндрами камеры для образца и эталонной камеры определяет чувствительность калориметра. Внешний эталонный цилиндр является кожухом, который обеспечивает однородный теплоотвод. Кожух соприкасается с тонкостенной ванной с циркулирующей водой. Такая конструкция приводит к небольшим габаритам, требует малых расходов материала и затрат на изготовление. Градиентная конструкция хорошо подходит для передвижных вариантов установки, для установки в перчаточном боксе или для больших образцов, когда общие габариты должны быть минимизированы. Градиентный калориметр обычно работает в режиме постоянной температуры, описанном далее в разделе 21.6.3. Конструкция градиентного мостового калориметра Маундской лаборатории описана в разделе 22.4.4 главы 22.

Разработанный Аргоннской национальной лабораторией калориметр с изотермической воздушной камерой является разновидностью градиентной конст-

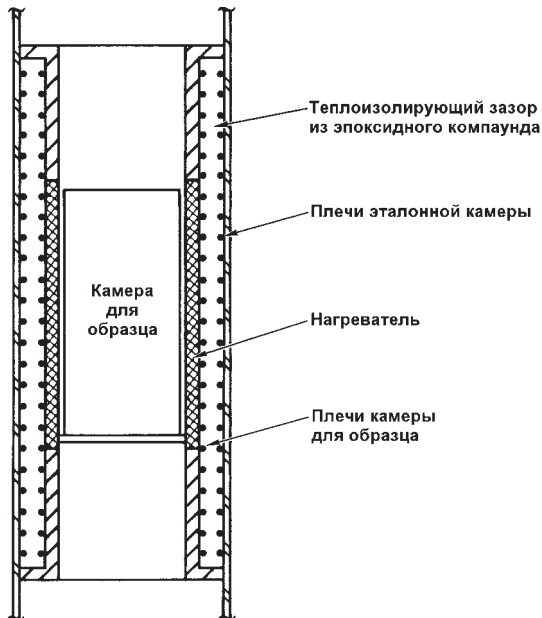


Рис. 21.6. Поперечное сечение градиентного мостового калориметра. Внешний теплоотвод, который мог бы представлять собой небольшую или просто воздушную камеру, не показан

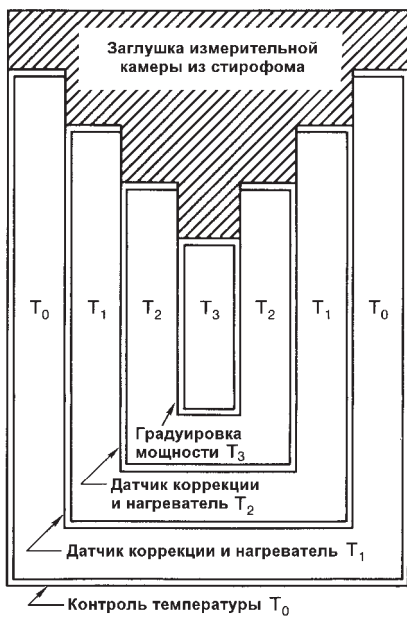


Рис. 21.7. Поперечное сечение калориметра с воздушной камерой, представляющего собой вариант градиентного мостового калориметра

рукции, которая не требует водяной ванны [9 и 10]. Этот калориметр (рис 21.7) описан в работе [10] как "термостат с постоянной температурой, состоящий из ряда концентрических камер. Каждая из этих камер сделана из алюминиевого цилиндра, на котором закреплены резистивные нагревательные спирали и тепловые датчики. Цилиндры отделены один от другого высокотемпературным теплоизолирующим материалом. Концы цилиндров одинаково защищены пробками, не

проводящими тепло, и плоскопараллельными нагревательными спиралями. В этом случае чередующиеся зоны высокой и низкой теплопроводности обеспечивают минимизацию эффектов локальных внешних температурных изменений. В калориметре устанавливается температурный профиль для исключения осевого теплового потока и обеспечения отрицательного радиального температурного градиента. На схеме (см. рис. 21.7) цепь управления с электронной обратной связью поддерживает соотношение температур: $T_3 > T_2 > T_1 > T_0 > T_{\text{внешн}}$. Внутренние два цилиндра (T_3, T_2) работают как измерительные камеры. Источник электропитания калориметра настраивается таким образом, чтобы поддерживать разность температур между этими цилиндрами до ± 20 микроградусов". Калориметры этого типа использовались для измерения герметизированных контейнеров с материалами в балк-форме, содержащими до 3 кг плутония, топливных таблеток из смешанных оксидов и топливных стержней длиной до 4 м. Примеры использования приведены в разделах 22.2.2, 22.3.2 и 22.5.1 главы 22.

21.6 МЕТОДЫ РАБОТЫ С КАЛОРИМЕТРАМИ ТЕПЛООВОГО ПОТОКА

21.6.1 Метод замещения

При этом методе работы измеряемые образцы помещаются в калориметр до достижения теплового равновесия. Разность температур между калориметром и теплоотводом определяется с помощью потенциала моста. Затем образец удаляется и калориметр нагревается электрическими средствами до тех пор, пока не будет достигнута та же температура теплового равновесия. Тепловая мощность образца может быть определена из известной мощности, обеспечиваемой нагревателем, замещающим образец. Для измерения образца и нагревателя используется одна и та же измерительная камера.

Метод замещения включает в себя следующие шаги [7, 8]:

1. Потенциал моста $ВР_0$ измеряется при пустой камере для образца, нулевой мощности нагревателя и контроле температуры окружающей среды. Обычно потенциал $ВР_0$ измеряется не для каждого образца, а с некоторой периодичностью.

2. Анализируемый образец помещается в калориметр и определяется равновесный потенциал моста $ВР_S$.

3. Затем образец удаляется и рассчитывается ток нагревателя, необходимый для замещения тепловой мощности образца. Требуемая мощность нагревателя составляет приблизительно

$$W_H(\text{приблиз.}) = (ВР_S - ВР_0) / S, \quad (21.15)$$

где S — чувствительность калориметра, определенная ранее с помощью уравнения (21.14).

Затем рассчитывается необходимый ток нагревателя. Проблема рассеивания мощности в проводах, идущих к нагревателю, может быть минимизирована в двухэлементном мостовом калориметре пропусканием проводов и через камеру для образца, и через эталонную камеру, в результате чего эффекты компенсируются.

4. Ток нагревателя подается в камеру образца до тех пор, пока не будет определен равновесный потенциал моста $ВР_H$. Кроме того, фактическая точная мощ-

ность нагревателя W_H рассчитывается на основе измеренного тока и напряжения нагревателя.

5. Тогда тепловая мощность неизвестного образца равна

$$W_S = W_H + (BP_S - BP_H) / S, \text{ Вт.} \quad (21.16)$$

Приведенная выше процедура представлена на рис 21.8, где также показана дополнительная сложность, вызываемая медленными дрейфами в измерительном приборе.

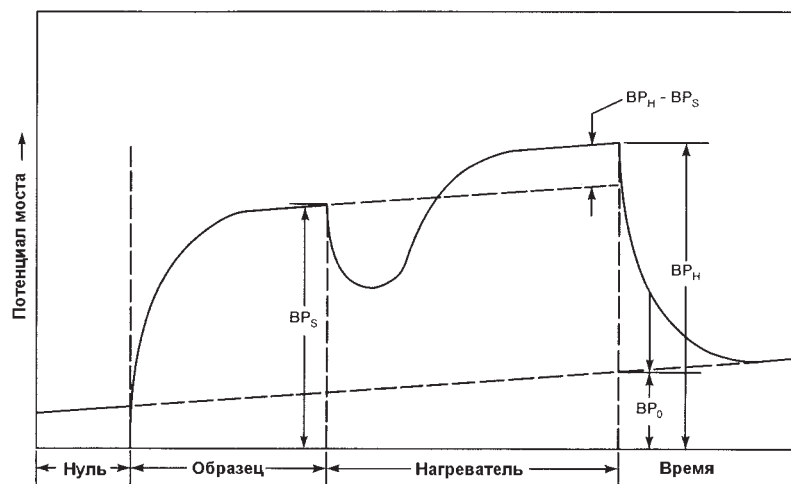


Рис. 21.8. Зависимость потенциала моста калориметра от времени, наблюдаемая по методу замещения. Верхние наклоны иллюстрируют дополнительную сложность, вызванную дрейфами градиентного измерительного устройства

21.6.2 Дифференциальный метод

Мостовой двухэлементный калориметр или калориметр с верхней/нижней камерами могут работать в дифференциальном режиме, в котором электрическая теплота эталонной камеры может непосредственно сравниваться с теплотой образца в измерительной камере. Поскольку измерения для образца и нагревателя проводятся одновременно, то анализы могут быть выполнены за половину того времени, которое требуется для метода замещения. Практически эта экономия времени реализуется только тогда, когда мощность образца известна заранее с погрешностью около 1 %. Таким образом, дифференциальный метод наиболее удобен, когда производятся анализы нескольких образцов приблизительно одного размера. Для образцов неизвестного размера этот метод позволяет выполнить анализ лишь несколько быстрее, чем метод замещения [8].

При использовании дифференциального метода тепловая мощность образца в равновесном состоянии описывается уравнением

$$W_S = W_H + (BP_S - BP_M) / S, \text{ Вт.} \quad (21.17)$$

BP_M представляет собой потенциал моста, рассчитанный на основе mW_H , где m — постоянная наклона. Величина $(BP_S - BP_M)$ равна нулю, если мощность нагревателя точно соответствует мощности образца. Если же это не так, то данная величина компенсирует небольшие различия между ними. Постоянная m опреде-

ляется во время градуировки пропусканием тока через последовательно включенные нагреватели образца и эталонной камеры [8].

21.6.3 Метод сервоконтроля постоянной температуры

В этом режиме работы температуры камеры для образца и внешней ванны поддерживаются на постоянном уровне с помощью механизма сервоконтроля. Мощность нагревателя используется для поддержания температуры камеры для образца на более высоком уровне, чем температура ванны. Когда образец помещается в калориметр, сервоконтроллер уменьшает мощность нагревателя на величину мощности образца, чтобы поддерживать температуру в камере на постоянном уровне. Этот метод, называемый также изотермическим методом, может применяться для любой конструкции моста калориметра. Использование метода постоянной температуры обычно сокращает время анализа на одну треть или наполовину, так как время, требующееся для достижения равновесия, зависит в основном от теплового сопротивления и теплоемкости образца и в меньшей степени — от калориметра.

Перед проведением анализа образцов методом постоянной температуры базовый уровень мощности устанавливается на уровне на 10-20 % выше оцениваемого уровня мощности любых градуировочных эталонов или реальных образцов. Измерение базового уровня мощности осуществляется для установления равновесного уровня мощности W_0 пустой камеры. Это измерение требует меньше времени, чем анализ образца, так как в камере отсутствует вещество.

Когда радиоактивный образец помещается в калориметр, мощность нагревателя падает, тогда как сервоконтроллер пытается поддержать постоянную температуру. Новый равновесный уровень мощности — W_C , а мощность образца составляет

$$W_S = W_0 - W_C, \text{ Вт.} \quad (21.18)$$

Контроль постоянной температуры калориметра может осуществляться с помощью аналоговых или цифровых схем. Цифровая схема обладает преимуществом, так как не требует регулировки по уравнению (21.18) для компенсации систематической погрешности, которая имеет место в аналоговых системах.

Метод сервоконтроля постоянной температуры является одним из наиболее быстрых методов работы калориметра, особенно при использовании "достижения предварительного равновесия" образца во внешней среде с контролируемой температурой.

21.7 ВРЕМЯ АНАЛИЗА

Время, необходимое для выполнения калориметрического анализа радиоактивного образца, зависит от ряда факторов, которые оказывают влияние на время, необходимое для достижения системой устойчивого состояния. Эти факторы включают в себя следующее:

- а) тип калориметра теплового потока — двухэлементный мостовой, мостовой с верхней/нижней камерами или градиентный мостовой;
- б) тепловое сопротивление и теплоемкость материала, используемого в конструкции калориметра, и материал образца;

- в) качество конструкции калориметра — плотность подгонки деталей конструкции, однородность воздушных зазоров и т.д.;
- г) физический размер камеры для образца калориметра и диаметр образца;
- д) упаковка образца — расположение источников теплоты внутри упаковки, наличие полостей и т.д.;
- е) метод работы калориметра — замещение, дифференциальный или сервоконтроль постоянной температуры;
- ж) использование предварительной подготовки образца;
- з) использование методик прогнозирования конечной точки достижения равновесного состояния;
- и) требуемая точность анализа.

Калориметрический анализ небольших образцов с хорошо известными характеристиками может быть проведен менее, чем за один час. С другой стороны, образцы продукции или скрапа в балк-форме для достижения теплового равновесия требуют от 4 до 16 ч. В табл. 21.2 [8] приведены несколько примеров длительностей анализа для калориметра с водяной ванной и двумя камерами. Плохая упаковка образца содержит пластмассовые мешки и свинцовую дробь, а хорошая упаковка — медную дробь. Более полные сводные данные приведены в работе [1]. Ниже рассматриваются некоторые факторы и методики, влияющие на длительность анализа.

Таблица 21.2 – Некоторые временные характеристики анализа для двухэлементного мостового калориметра [8]

Условия проведения анализа	Время достижения равновесия, ч		
	1,0 %*	0,1 %*	0,01 %*
Только нагреватель, нет образца, нет сервоконтроля температуры	2,8	3,6	4,8
Плохо упакованный образец, нет сервоконтроля температуры	8,1	10,2	13,1
Хорошо упакованный образец, нет сервоконтроля температуры	5,2	6,3	8,0
Плохо упакованный образец, сервоконтроль постоянной температуры	4,7	6,1	8,0
Плохо упакованный образец, сервоконтроль постоянной температуры, предварительная подготовка образца	0,8	1,6	3,0

* Погрешность анализа

21.7.1 Конструкция калориметра и метод работы

Физические размеры и тепловые свойства конкретного калориметра влияют как на время достижения равновесия, так и на чувствительность. Уменьшение

теплового сопротивления калориметра сокращает время достижения равновесия, но уменьшает также наблюдаемый потенциал моста и, согласно уравнению (21.14), чувствительность. Так как уменьшение чувствительности приводит к понижению точности, выбор конструкции калориметра должен отражать соотношение между временем и точностью анализа для определенного диапазона образцов. Важными факторами являются состав и размеры зазора между образцом и стенками калориметра.

Метод замещения для калориметра является наиболее медленным режимом работы, поскольку для выполнения анализа требуется провести три различных измерения с использованием калориметра: измерение образца, измерение нагревателя и периодическое измерение базового уровня VR_0 . Дифференциальный метод, который может использоваться с двухэлементными мостовыми калориметрами, требует проведения только двух измерений, так как электрический нагрев в эталонной камере постоянно сравнивается с теплотой, создаваемой образцом. Этот режим снижает время, необходимое для проведения анализа.

Режим работы с сервоконтролем постоянной температуры, или изотермический режим, хорошо подходит для сокращения времени анализа. Когда корпус калориметра поддерживается в равновесном состоянии, влияние его постоянной времени сводится к минимуму, а время анализа в основном зависит от тепловой постоянной времени образца. Время анализа может быть еще больше сокращено, если температура образца предварительно приведена в состояние равновесия с температурой калориметра, как описано в следующем разделе.

21.7.2 Предварительная подготовка образца

Предварительный нагрев образца приблизительно до внутренней температуры калориметра может использоваться вместе с методом сервоконтроля постоянной температуры для сокращения времени анализа, как показано в табл. 21.2. Предварительная подготовка может использоваться самостоятельно или в совокупности с методом прогнозирования конечной точки, описанным в следующем разделе. Когда образец сначала помещается в отдельную водяную ванну предварительной подготовки, а затем устанавливается в калориметр, то время, необходимое для достижения равновесия сокращается, поскольку только сам образец должен достичь равновесия с установившимся тепловым потоком. Градиентный зазор уже находится в установившемся тепловом потоке по отношению к теплоотводу, и мощность нагревателя быстро достигнет уровня равновесной мощности.

Предварительная подготовка имеет некоторые преимущества и недостатки [7]. Главным преимуществом является повышенная производительность. Ванна предварительной подготовки может быть спроектирована для размещения нескольких образцов и ее можно использовать ночью для подготовки образцов для анализа на следующий день. Недостатками при этом являются необходимость дополнительного пространства для размещения, использование электроники и действий оператора. Кроме того, температура ванны предварительной подготовки должна поддерживаться близкой к внутренней температуре калориметра. Любое изменение базового уровня мощности калориметра потребует регулировки температуры ванны предварительной подготовки.

21.7.3 Прогнозирование конечной точки

Прогнозирование равновесия представляет собой математический метод для сокращения времени анализа с использованием калориметра без оказания влияния на чувствительность калориметра или упаковку образца. Этот метод применим к различным типам калориметров. Равновесные величины могут быть надежно предсказаны с экономией времени анализа до 50 % [11, 12].

Прогнозирование конечной точки основано на том принципе, что функция отклика калориметра в основном описывается одной экспонентой в виде

$$Y = A + Be^{-\lambda t}, \quad (21.19)$$

где Y — зависящая от времен величина выходного сигнала калориметра;

A — величина выходного сигнала равновесия;

B — коэффициент пропорциональности;

λ — постоянная конечного теплового распада для калориметра и образца [11].

В действительности калориметр содержит различные тепловые области, каждая из которых, как показано на рис 21.9, имеет различные значения теплового сопротивления R_i и теплоемкости C_i . Различные тепловые свойства каждой области определяют время, необходимое для достижения равновесия с окружающей средой. Время, требуемое для достижения равновесия всего калориметра, является суммой нескольких экспоненциальных функций отклика. Поскольку метод прогнозирования конечной точки основывается на использовании уравнения (21.19) с одной экспоненциальной функцией, то экономия времени зависит от обоснованности этого приближения. Плохо упакованные образцы с высоким тепловым сопротивлением или теплоемкостью будут проанализированы с меньшей экономией времени.

Процедура расчета выходного сигнала равновесия A требует периодического определения выходного сигнала Y в течение анализа [7]. После сглаживания величины Y и подгонки к уравнению (21.19) рассчитывается величина A . Эта процедура периодически повторяется по мере проведения анализа и определения все большего числа значений Y . На рис. 21.10 проиллюстрирован этот процесс. Когда предсказанные величины A обнаруживают нулевой наклон в пределах ожидаемого стандартного отклонения, измерение заканчивается. Анализ прекращается прежде, чем калориметр действительно достигает равновесия.

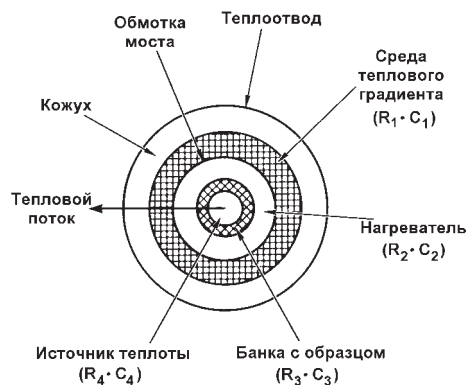


Рис. 21.9. Радиальное поперечное сечение идеализированного калориметра с четырьмя участками, каждый из которых имеет различные значения теплового сопротивления R_i и теплоемкости C_i .

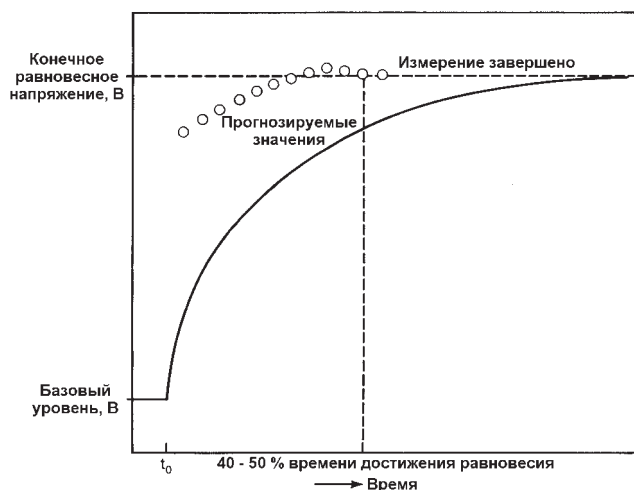


Рис. 21.10. Графическое представление метода прогнозирования конечной точки. Измерение завершается, когда прогнозируемые значения характеризуются нулевым наклоном в пределах ожидаемого стандартного отклонения

21.8 ГРАДУИРОВКА КАЛОРИМЕТРА

Точная градуировка необходима для определения соответствия выходной мощности калориметра и известных значений мощности. Для градуировки обычно используются два типа стандартных образцов: электрические и радиоизотопные источники теплоты. Независимо от используемого метода градуировки весьма важно, чтобы электрические или радиоизотопные стандартные образцы были сертифицированы Национальным бюро стандартов [4].

21.8.1 Электрическая градуировка

Методы электрической градуировки применимы для калориметрических методов, в которых мощность нагревателя дублирует или замещает тепловую мощность образца [4]. Мощность, вырабатываемая в электрическом нагревателе, определяется произведением падения напряжения нагревателя на ток, протекающий через нагреватель. Для градуировки нагревателя ток может определяться измерением падения напряжения на эталонном сопротивлении. Такая градуировка дает соотношение между потенциалом моста и тепловой мощностью образца — чувствительность калориметра (уравнение (21.14)). Результатом этого является кривая зависимости чувствительности от мощности образца.

Для точной электрической градуировки необходимо, чтобы электрический нагреватель вызывал такие же изменения на выходе калориметра, что и образец эквивалентной мощности [4]. Это означает, что расположение нагревателя относительно измерительного датчика должно быть таким же, как у радиоактивного образца. Погрешность, связанная с этим фактором, вызвана неопределенностью теплового распределения. Для определения величины этой погрешности рекомендуется помещать небольшой образец в различных точках камеры и измерять выходной сигнал для различных положений. Для этой цели был бы идеален один

из радиометрических образцовых источников теплоты, рассматриваемых в следующем разделе. Другим источником погрешности при электрической градуировке является потеря мощности в проводах нагревателя для калориметров с одной камерой. Методика поправки на погрешность за счет проводов нагревателя описана в работе [4].

21.8.2 Градуировка с использованием радиоизотопных источников теплоты

Градуировка с использованием радиоизотопных источников теплоты более проста и обычно предпочтительна, так как охватывает все стороны работы калориметра. В Маундской лаборатории имеются образцовые источники теплоты на основе $^{238}\text{PuO}_2$ в диапазоне от 0,04 мВт до 100 Вт, для которых может быть прослежена связь с эталонными материалами Национального бюро стандартов [7]. Эти источники компактны и для них может быть рассчитана зависимость выходной мощности от времени. Источники теплоты должны охватывать диапазон реальных мощностей образцов.

В ходе процедуры градуировки радиоизотопные источники теплоты помещаются в камеру для образца также, как это делается для неизвестных образцов. Выходной сигнал калориметра измеряется с использованием известной мощности каждого образцового источника теплоты. Эти данные используются для получения градуировочной кривой и связанной с ней кривой чувствительности также, как и в случае электрической градуировки. Дополнительные подробности об этой процедуре приведены в работе [4].

21.9 ИСТОЧНИКИ ПОГРЕШНОСТЕЙ

Как описано в разделе 21.3, определение содержания плутония является двухступенчатым процессом: определение мощности калориметром и определение эффективной удельной мощности экспериментальным или расчетным методами. Источники погрешностей сведены в табл. 21.3 [4, 7, 13].

Источники погрешностей при определении мощности включают в себя:

- а) неточность калориметрической системы — дисперсия отклика системы вследствие колебаний температуры помещения, температуры ванны, влажности, веса образца, ударов образца при загрузке и выгрузке и т.д.;
- б) погрешность теплового распределения — дисперсия отклика системы, обусловленная пространственным размещением образца в камере;
- в) погрешность градуировки — дисперсия отклика системы в зависимости от метода градуировки и используемых образцовых источников;
- г) погрешность из-за выделения тепла от вызывающих помехи процессов, таких, например, как реакции продуктов деления или химические реакции.

Источники погрешности при определении эффективной удельной мощности зависят от применяемого метода: экспериментального или расчетного. Если используется экспериментальный метод, то возможными источниками погрешностей являются:

- а) погрешности определения мощности образца;
- б) погрешности определения содержания плутония в образце.

При применении расчетного метода для определения эффективной удельной мощности, источниками погрешностей являются:

- а) погрешности определения изотопного состава образца;
- б) неопределенность значений удельной мощности (см. последний столбец в табл. 21.1).

Суммарная неопределенность анализа может быть оценена объединением погрешности определения мощности калориметром с неопределенностью эффективной удельной мощности:

$$\sigma(Pu) = \sqrt{\sigma^2(W) + \sigma^2(P_{\text{эфф}})}. \quad (21.20)$$

Значения погрешностей, приведенные в табл. 21.3, являются типичными. Реальные погрешности могут быть совершенно другими. В частности, погрешности, связанные с определением изотопного состава, зависят от используемого метода. Для концентраций ниже 0,1 % приведенные погрешности типичны для погрешностей результатов радиометрических измерений ^{238}Pu и ^{241}Am . Для концентраций от 0,1 до 1 % минимальная погрешность масс-спектрометрического определения составляет 1 %, для концентраций свыше 20 % минимальная погрешность составляет 0,3 %. Если изотопный состав определяется методом гамма-спектрометрии высокого разрешения, то погрешности для большинства плутониевых изотопов находятся в пределах от 0,1 до 10 %. Погрешности определения эффективной удельной мощности находятся в диапазоне от 0,3 до 1 % при времени измерения от 1 до 4 ч ([14] и глава 8). Обычно погрешность измерений мощности калориметром меньше, чем неопределенность, связанная с определением эффективной удельной мощности.

Таблица 21.3 – Источники погрешностей калориметрического анализа [4, 7, 13]

Источник погрешности	Приблизительное значение, %
Измерение мощности	
неточность калориметрической системы	< 0,1
погрешность теплового распределения	< 0,1
погрешность градуировки	< 0,1
погрешность от помех	< 0,1
Определение эффективной удельной мощности	
экспериментальный метод	
определение мощности образца	< 0,2
определение содержания плутония в образце	< 0,2
расчетный метод	
определение изотопного состава	
концентрация < 0,1 %	2-5
концентрация > 0,1 %	1,5
концентрация > 1 %	0,5
концентрация > 20 %	0,3
неопределенность значений удельной мощности	< 0,1

ЛИТЕРАТУРА

1. W. Rodenburg, "Calorimetric Assay," in "Handbook of Nuclear Safeguards Measurement Methods," D.R. Rogers, Ed., Mound Laboratory report MLM-2855, NUREG/CR-2078 (1983), pp.533-550
2. W. Rodenburg, "An Evaluation of the Use of Calorimetry for Shipper-Receiver Measurements of Plutonium," Mound Laboratory report MLM-2518, NUREG/CR-0014 (1978).
3. W. Strohm, S. Fiarman, and R. Perry, "A Demonstration of the in-Field Use of Calorimetric Assay for IAEA Inspection Purposes," *Nuclear Materials Management* XIV (3), 182 (1985).
4. "Calibration Techniques for the Calorimetric Assay of Plutonium-Bearing Solids Applied to Nuclear Materials Control," ANSI N15.22-1975 (American National Standards Institute, Inc., New York, 1973) and 1986 revision.
5. "Methods for Chemical, Mass Spectrometric, and Spectrochemical Analysis of Nuclear-Grade Plutonium Dioxide Powder and Pellets," ANSI N104-1973 (American National Standards Institute, Inc., New York, 1973).
6. "Methods for Chemical, Mass Spectrometric, Spectrochemical, Nuclear, and Radiochemical Analysis of Nuclear-Grade Plutonium Metal," ANSI N572-1974 (American National Standards Institute, Inc., New York, 1974)
7. Mound Calorimetric Assay Training School Manual, Mound Laboratory, Miamisburg, Ohio, October 22-25, 1985.
8. F. O'Hara, J. Nutter, W. Rodenburg, and M. Dinsmore, "Calorimetry for Safeguard Purposes," Mound Laboratory report MLM-1798 (1972).
9. C. Roche, R. Perry, R. Lewis, E. Jung, and J. Haumann, "A Portable Calorimeter System for Nondestructive Assay of Mixed-Oxide Fuels," American Chemical Society Symposium Series, No. 79 (1978).
10. C. Roche, R. Perry, R. Lewis, E. Jung, and J. Haumann, "Calorimetric Systems Designed for In-Field Nondestructive Assay of Plutonium-Bearing Materials", International Atomic Energy Agency/Argonne National Laboratory report IAEA-SM-231/78 (1978).
11. C.L. Fellers and P.W. Seabaugh, "Real-Time Prediction of Calorimetric Equilibrium," *Nuclear Instruments and Methods*, 163, 499 (1979).
12. R.A. Hamilton, "Evaluation of the Mound Facility Calorimeter Equilibrium Prediction Program," Rockwell Hanford report RHO-SA-114 (1979).
13. W. Rodenburg, "Some examples of the Estimation of Error for Calorimetric Assay of Plutonium-Bearing Solids," Mound Laboratory report MLM-2407, NUREG-0229 (1977).
14. T. Sampson, S.T. Hsue, J. Parker, S. Johnson, and D. Bowersox, "The Determination of Plutonium Isotopic Composition by Gamma-Ray Spectroscopy," *Nuclear Instruments and Methods*, 193, 177 (1982).

Глава 22

Приборы для калориметрического анализа

Р. Лайкс
(Переводчик П. И. Самарин)

22.1 ВВЕДЕНИЕ

В данной главе описываются некоторые современные системы калориметрического анализа, используемые в настоящее время в ядерном топливном цикле для неразрушающего анализа плутония. Начиная с 1950 г. Маундской лабораторией (МЛ, Monsanto Research Corporation, Майямибург, штат Огайо) создано свыше 200 калориметров различных конструкций для целей учета и контроля ядерных материалов, главным образом, на объектах Министерства энергетики США. Наряду с этим, некоторые объекты Министерства энергетики и коммерческие ядерные предприятия создавали свои собственные калориметры. Аргоннская национальная лаборатория (АНЛ, Чикагский Университет, Аргонн, штат Иллинойс) построила несколько калориметров для Международного агентства по атомной энергии (МАГАТЭ). Описываемые в этой главе калориметры представляют типы используемых в настоящее время приборов, включающие приборы, созданные МЛ, АНЛ, заводом Рокки Флэтс и фирмой "Дженерал электрик".

Описываемые в настоящей главе приборы МЛ представлены следующими калориметрами: аналитическим, передвижным, серийным двухэлементным мостовым и градиентным мостовым. Приборы АНЛ представлены следующими калориметрами: для небольших образцов, для анализа материалов в балк-форме, для топливных стержней длиной в 1 м. Также описываются используемые для производственных целей калориметры Рокки Флэтс и калориметр фирмы "Дженерал Электрик" для облученных ТВЭЛов. Приведенным в настоящей главе примерам предшествует сводка типичных компонентов калориметрических систем и обсуждение их конструкций.

22.1.1 Компоненты систем калориметрического анализа

Типичная современная система, предназначенная для калориметрического анализа материалов, содержащих плутоний, имеет следующие компоненты:

а) механически точно обработанный корпус калориметра теплового потока: двухэлементного мостового, мостового с верхней/нижней камерами или градиентного мостового типа. Каждая камера содержит схему электрического нагревателя для точной имитации мощности образца;

б) мостовую схему для точного измерения разности температур между камерой для образца и внешним теплоотводом. Электрическая схема включает высококачественные потенциометры и цифровые вольтметры;

в) цифровой или аналоговый считывающий прибор, который обычно представляет собой микрокомпьютер. Компьютер управляет работой калориметра, сбором и хранением данных и осуществляет анализ данных;

г) электрические или радиоизотопные градуировочные образцовые источники теплоты. Электрические измерения используются для определения разностей температур и для управления схемами электрических нагревателей, имитирующих мощность образца. Кроме того, могут быть предусмотрены радиоизотопные образцовые источники теплоты для градуировки и определения тепловой мощности систем.

22.1.2 Рассмотрение конструкции калориметров

При проектировании прибора для проведения калориметрического анализа решающее влияние на конструкцию оказывают многие важные факторы. Невозможно создать единый универсальный калориметр, который был бы применим ко всем задачам измерений. В этом разделе приводятся некоторые факторы, оказывающие влияние на конструкцию калориметра:

а) *Размер образца.* Физический размер образца предопределяет размеры камер для образца. Плотный тепловой контакт образца с калориметром существенен для минимизации времени анализа. Диаметры камер для образца существующих калориметров находятся в диапазоне от 1 до 30 см.

б) *Тепловая мощность образца.* В общем случае для образцов высокой мощности требуются низкочувствительные калориметры с низким тепловым сопротивлением, а для образцов малой мощности — высокочувствительные микрокалориметры с высоким тепловым сопротивлением.

в) *Градуировка.* Конструкция калориметра зависит от метода градуировки, т.е. используются ли для этого радиоизотопные или электрические образцовые источники теплоты.

г) *Конструкционные материалы.* Теплоемкость и теплопроводность материалов, используемых в конструкции калориметра, оказывают влияние на рабочие характеристики прибора.

д) *Производительность.* Требуемое для анализа время оказывает влияние на выбор типа калориметра, метода работы с ним и определяет необходимое количество калориметров.

е) *Точность.* При выборе типа калориметра и метода работы желаемая точность анализа должна сопоставляться с требуемой производительностью и имеющейся производственной площадью.

ж) *Условия использования.* На конструкцию калориметра оказывает влияние рабочая окружающая среда и имеющаяся площадь для размещения калориметра. В заводских условиях непрерывного производства требуются конструкции, отличающиеся от конструкций для работы в лабораторных условиях.

22.2 НЕБОЛЬШИЕ КАЛОРИМЕТРЫ ДЛЯ АНАЛИЗА В ЛАБОРАТОРНЫХ УСЛОВИЯХ

Небольшие калориметры могут использоваться в лабораториях аналитической химии для выполнения неразрушающего анализа небольших образцов плутония. Они могут использоваться для определения эффективной удельной мощности экспериментальным методом, при котором небольшие образцы плутония

анализируются неразрушающим калориметрическим методом, а затем разрушающими химическими методами. Кроме того, небольшие калориметры являются средством оценки погрешностей пробоотбора.

22.2.1 Маундский аналитический калориметр

Аналитический калориметр Маундской лаборатории был разработан специально для использования в лаборатории аналитической химии [1]. Этот компактный прибор (рис. 22.1) предназначен для измерения образцов объемом до 5 см^3 (около 10 г плутония). Калориметр включает в себя автоматический загрузчик образцов с положением для подготовки к достижению теплового равновесия и предназначен для установки внутри стандартного 90-сантиметрового перчаточного бокса. Для образцов, выделяющих мощность 10 мВт, погрешность и сходимость результатов измерения лучше, чем 0,1 %. Данные о рабочих характеристиках аналитического калориметра приведены в табл. 22.1 [1, 2]. Значения погрешности и сходимости в граммах приведены для плутония низкого выгорания с эффективной удельной мощностью 2,3 мВт/г и хорошо известным изотопным составом.

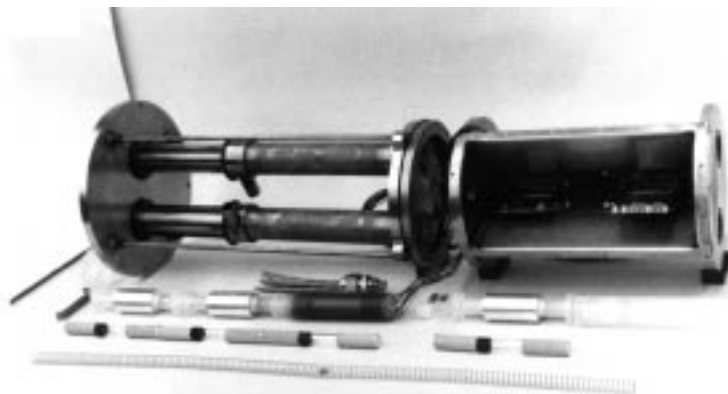


Рис. 22.1. Внешний вид разобранного Маундского аналитического калориметра для анализа небольших образцов плутония в стеклянных ампулах весом 2 г. (Фотография предоставлена Маундской лабораторией)

Таблица 22.1 – Рабочие характеристики Маундского аналитического калориметра для образцов с удельной мощностью 2,3 мВт/г и известным изотопным составом [1, 2]

Погрешность, г	0,008
Сходимость, г	0,008
Диапазон измерений	
масса, г	0,4–10
тепловая мощность, мВт	1–23
Чувствительность измерения в контейнере объемом 5 см^3	
масса, г	0,4
тепловая мощность, мВт	1
Время анализа, мин	30–100

В аналитическом калориметре измерялось большое разнообразие содержащих плутоний материалов, включая металлы, оксиды и смеси оксидов. Затем они были растворены и проанализированы на содержание плутония. Сравнение полученных результатов показало, что калориметрический анализ является точным и обеспечивает хорошую сходимость результатов.

22.2.2 Аргонский калориметр для небольших образцов

Аргонский калориметр для небольших образцов предназначен для анализа образцов смешанного оксидного топлива объемом до 6 см³ в форме таблеток, порошков и растворов [3, 4]. Его максимальная мощность составляет 45 мВт, что эквивалентно 20 г плутония низкого выгорания. Уникальной особенностью этой системы является ее портативность, полезная для проведения инспекций на объектах. На рис. 22.2 показаны два модуля, из которых состоит система: изотермический калориметр и модуль сбора данных. Общий вес прибора составляет 18 кг.



Рис. 22.2. Аргонский калориметр для небольших образцов (справа) и его система сбора данных (слева). (Фотография предоставлена Аргонской национальной лабораторией)

Калориметр для небольших образцов является изотермическим градиентным мостовым калориметром. Он представляет собой "сухой" калориметр или калориметр с "воздушной камерой", в котором отсутствует теплоотводящая водяная ванна, как описано в разделе 21.5.4 и показано на рис. 21.7 главы 21. Для получения хорошей точности эта конструкция требует работы прибора в режиме сервоконтроля постоянной температуры. Сведения о рабочих характеристиках калориметра для небольших образцов приведены в табл. 22.2 [4-6]. Сходимость результатов измерений калориметром составляет около 0,1 % при времени измерения

20 мин [4]. Малое время проведения анализа и хорошая сходимость результатов частично обусловлены двойным капсулирование м образцов в металлические контейнеры с целью обеспечения максимальной теплопередачи.

Таблица 22.2 – Рабочие характеристики Аргонного калориметра для небольших образцов с предполагаемой мощностью 2,3 мВт/г и известным изотопным составом [4-6]

Погрешность, г	0,01
Сходимость, г	0,01
Диапазон измерений	
масса, г	1–20
тепловая мощность, мВт	2–45
Чувствительность измерения, г	1
Время анализа, мин	20

Модуль сбора данных автоматически выполняет электрическую градуировку в выбранном входном диапазоне. Она выполняется с помощью микропроцессора, рассчитывающего опорное напряжение, которое должно быть подано на витки градуировочного резистора. Эта электрическая градуировка заменяет набор плутониевых стандартных образцов во всем измерительном диапазоне [4].

Независимая проверка и оценка калориметра [5] показали его нечувствительность к действиям оператора и влиянию окружающей среды. Однако рекомендовано проводить предварительный нагрев капсул с образцами, чтобы избежать дрейфа базового уровня эталонной мощности. Градуировка калориметра проводилась с помощью плутониевых образцовых источников теплоты, а для проверки градуировки было рекомендовано использовать электрически подогреваемую капсулу.

22.3 ПЕРЕДВИЖНЫЕ КАЛОРИМЕТРЫ

Для использования на различных объектах ядерного топливного цикла во время проведения периодических проверок, подтверждающих инвентарные количества материалов (физических инвентаризаций), было разработано несколько калориметров в передвижном варианте. Такая портативность обеспечивает инспектору возможность независимо проверять инвентарные количества материалов. Кроме того, для определения изотопного состава плутония используется гамма-спектрометр, в результате чего можно преобразовать измеренную калориметром тепловую мощность в массу плутония.

22.3.1 Маундский передвижной калориметр

Маундский передвижной калориметр был разработан для использования инспекторами Министерства энергетики [1, 7]. По своей конструкции он аналогичен большему по размерам прибору, предназначенному для работы в заводских условиях, описанному далее в разделе 22.4.1, за исключением того, что ванна постоянной температуры заменена теплообменником, насосом и небольшим резер-

вуаром с регулируемой температурой. Вода из небольшой ванны прокачивается через теплообменник для поддержания калориметра при постоянной температуре. Эти изменения существенно сокращают габариты и вес системы. Данный калориметр относится к типу мостовых калориметров с верхней и нижней камерами [1].

На рис. 22.3 показаны небольшой водяной резервуар, блок электроники и корпус калориметра, установленные на алюминиевой тележке. Так как общий вес системы составляет всего 200 кг, то эту установку может передвигать один человек. Камера может вмещать образцы до 13 см в диаметре и высотой до 20 см при мощности образцов в диапазоне от 0,5 до 10 Вт. Система сбора данных считывает потенциал моста, контролирует температуру воды в резервуаре с точностью 0,001 °С и использует метод прогнозирования конечной точки для сокращения времени анализа [7].



Рис. 22.3. Передвижная Маундская калориметрическая система с контроллером температуры ванны (вверху слева), блоком электроники и системой сбора данных (внизу слева) и мостовым калориметром с верхней/нижней камерами (справа). (Фотография предоставлена Маундской лабораторией)

В полевых условиях после распаковки требуется около 4 ч для доведения водяного резервуара до контролируемой температуры и охлаждения внутреннего германиевого детектора гамма-излучения. Во время работы для каждого измерения тепловой мощности образца калориметром и гамма-спектрометрического анализа

требуется около 4 ч. Работающий в режиме реального времени компьютер используется для получения изотопного состава на основе анализа гамма-спектра и для расчета эффективной удельной тепловой мощности. Неопределенности результатов измерения составляют около 0,3 % для определения мощности, включая погрешности измерения, градуировки и управления нагревателем, и 1-2 % при определении удельной мощности по гамма-излучению [6]. Сведения о рабочих характеристиках передвижного калориметра приведены в табл. 22.3 [7].

Таблица 22.3 – Рабочие характеристики Маундского передвижного калориметра при предполагаемой мощности образца 2,3 мВт/г и известном изотопном составе [7]

Погрешность, %	0,3
Сходимость, %	0,1
Диапазон измерений	
масса, кг	0,2–4,4
тепловая мощность, Вт	0,5–10
Время анализа, ч	4

22.3.2 Аргонский калориметр для анализа материалов в балк-форме

Аргонский калориметр для анализа материалов в балк-форме (рис. 22.4) был разработан для использования инспекторами МАГАТЭ [6, 8]. Он предназначен для измерения герметизированных контейнеров, содержащих до 3 кг плутония высокого выгорания в форме металла, порошка или скрапа. Этот изотермический градиентный воздушный калориметр (см. раздел 21.5.4 главы 21) работает в режиме сервоконтроля (см. раздел 21.6.3 главы 21). Он состоит из пяти вложенных друг в друга цилиндров с сервоконтролем температуры, отделенных один от другого теплопроводящим эпоксидным компаундом. Эта система включает в себя нагреватели для предварительного нагрева образцов и полностью управляется микропроцессором. Камера для образца может вмещать контейнеры диаметром 11 см и высотой 33 см.

Сведения о рабочих характеристиках [6, 8–10] калориметра для анализа материалов в балк-форме приведены в табл. 22.4. В одном эксперименте проводился анализ ТВЭЛов длиной 18 см из смеси оксидов при различном количестве ТВЭЛов и их различном расположении [6]. Геометрическое размещение не оказывает влияния на результаты анализа, а отклик на грамм материала был постоянным в пределах 0,1 % при изменении количества стержней. Такой результат отличается от ситуации при других методах анализа, в которых самопоглощение гамма-излучения или размножение нейтронов в образце могут привести к нелинейным эффектам.

Полевые испытания калориметра для анализа материалов в балк-форме проводились на заводе по изготовлению смешанного оксидного топлива в Бельгии [9]. Были проанализированы пять банок с оксидом плутония со средней погрешностью 0,2 % (1 σ). Большинство банок с плутонием на объекте имели диаметр более 11 см и поэтому не могли быть проанализированы при этих испытаниях. Не-



Рис. 22.4. Аргонский калориметр для анализа материалов в балк-форме (в центре) с системой сбора данных (слева), блоком питания схемы управления (справа), камерами предварительного нагрева образцов и калориметрическими контейнерами (на переднем плане). (Фотография предоставлена Аргонской национальной лабораторией)

давняя оценка этого калориметра для анализа материалов в балк-форме на трех объектах Агентства по атомной энергии Великобритании включала в себя измерение более 70 стандартных образцов, содержащих плутоний в виде оксида, металла, топливных таблеток или смешанных оксидов [10]. Используя значение измеренной мощности и сведения об изотопном составе образца, полученные с помощью гамма-спектрометрии, можно видеть, что отношение измеренной массы плутония к заявленной массе плутония обычно отличалось от 1 на 0,3%. Считается, что отсутствие водяной рубашки охлаждения полезно при проведении таких полевых испытаний.

Таблица 22.4 – Рабочие характеристики Аргонского калориметра для анализа материалов в балк-форме [6, 8–10]

Погрешность, %	0,1–0,9
Сходимость, %	0,1–0,7
Диапазон измерений	
масса плутония, кг	до 10
тепловая мощность, Вт	1,4–26
Время анализа с прогнозированием конечной точки, ч	4

22.4 КАЛОРИМЕТРЫ ДЛЯ РАБОТЫ В ЗАВОДСКИХ УСЛОВИЯХ

22.4.1 Маундский серийный двухэлементный мостовой калориметр

Серийный двухэлементный мостовой калориметр (рис. 22.5) предназначен для анализа плутония в форме металла, оксида, скрапа и отходов высокой плотности [10]. Он создан для использования в заводских условиях. Камера для образца и эталонная камера находятся в водяной ванне с контролем постоянной температуры и имеют примерно 12 см в диаметре для размещения в них стандартных банок, в которые упакованы плутониевые материалы. По этому же проекту изготавливают калориметры, способные размещать банки с отходами и скрапом объемом до 3,8 л. Прибор, показанный на рис. 22.5, представляет собой два двухэлементных мостовых калориметра, помещенных в общую водяную ванну.

Каждый из двухэлементных мостовых калориметров может иметь сервоконтроллер для поддержания постоянной температуры, камеру для образца с возможностью достижения предварительного равновесия или средства использования методов прогнозирования конечной точки. Эти отличительные особенности могут сократить время анализа и повысить производительность прибора. Все электрические измерения выполняются с помощью мостовых схем или цифровых вольтметров и передаются непосредственно в компьютерную систему сбора данных. Эталонные резисторы и источники напряжения соответствуют требованиям Национального бюро стандартов и используются для обеспечения точных



Рис. 22.5. Маундский серийный двухэлементный мостовой калориметр. Водяная ванна (слева) содержит два двухэлементных мостовых калориметра. (Фотография предоставлена Маундской лабораторией)

измерений. Для градуировки применяются образцовые источники теплоты на основе плутония-238.

На плутониевом производстве в Лос-Аламосе для анализа плутониевых полуфабрикатов и изделий используются два двухэлементных мостовых калориметра модели 102 с общей водяной ванной [12], аналогичных установке, показанной на рис. 22.5. В целях экономии площади, камеры для образца с достижением предварительного равновесия не применяют. Все анализы выполняются без прогнозирования конечной точки в течение 8 ч. Программа контроля измерений требует еженедельного проведения измерения стандартного образца весом 400, либо 870 г. Анализ результатов контроля измерений за год показывает, что сходимость результатов определения мощности составляет около 0,1 %, а смещение — около 0,1 %. Для больших образцов эффективная удельная мощность определяется с помощью гамма-спектрометрии со сходимостью результатов около 0,4-0,5 % (1 σ) при времени измерения 1,5-2 ч. При этом общая сходимость определения массы плутония для больших однородных образцов составляет 0,5-0,7 % (1 σ) (частная информация от Р. Бланкеншипа и Ф.Сью, ЛАНЛ). Сведения о рабочих характеристиках двухэлементного мостового калориметра приведены в табл. 22.5 [11, 12]. Аналогичные сведения о рабочих характеристиках были представлены для плутония высокого выгорания с эффективной удельной тепловой мощностью около 14,5 мВт/г [13].

Таблица 22.5 – Рабочие характеристики Маундского серийного двухэлементного мостового калориметра при предполагаемой мощности 2,3 мВт/г и известном изотопном составе ([11, 12] и частная информация от Р. Бланкеншипа и Ф.Сью, ЛАНЛ)

Погрешность, %	0,1–0,2
Сходимость, %	0,1–0,2
Диапазон измерений	
масса, кг	0,1–2,5
тепловая мощность, мВт	0,23-5,8
Время анализа, ч	8

Для сравнения и повышения производительности на производстве Лос-Аламоса также используются четыре мостовых калориметра с верхней/нижней камерами, по внешнему виду похожие на калориметры, описанные ниже в разделе 22.4.4. Два из них имеют камеры для образца диаметром 12,4 см, а два других — камеры для образца диаметром 17,8 см. Для сокращения времени анализа калориметры работают с использованием метода прогнозирования конечной точки. Типичное время анализа образцов, содержащих 2-3 кг плутония, составляет немногим более 3 ч. Небольшие или плохо упакованные образцы могут потребовать для анализа до 8 ч, при этом 100 г плутония являются нижним рабочим пределом, позволяющим избежать увеличения времени анализа. Результаты контроля измерений за год показывают, что эти более быстро работающие калориметры имеют сходимость результатов измерений около 0,2 % по сравнению со сходимостью 0,1 % для двухэлементного мостового калориметра.

22.4.2 Маундский калориметр для совместных измерений изотопов

Калориметрический анализ в заводских условиях требует как измерения тепловой мощности образца с помощью калориметра, так и определения (для расчетного метода) эффективной удельной тепловой мощности образца с помощью масс-спектрометрических или гамма-спектрометрических измерений изотопного состава. Наиболее общий подход для серии образцов предполагает последовательные измерения изотопного состава плутония с помощью гамма-спектрометра высокого разрешения, за которыми следует калориметрический анализ. Измерения изотопного состава и калориметрические измерения могут также осуществляться одновременно.

На рис. 22.6 показан пример системы совместных измерений [14]. Данный калориметр относится к Маундским передвижным мостовым калориметрам с верхней/нижней камерами (см. рис. 21.5 главы 21) и содержит три слоя воды (всего 3,1 см), три слоя оргстекла (всего 2,1 см), 1 см эпоксидной смолы, 0,6 см алюминия и 0,1 см нержавеющей стали между образцом и детектором гамма-излучения. Пропускание гамма-квантов с энергией от 100 до 400 кэВ через стенки калориметра составляет примерно 20-40%. Так как в этой конструкции используется оргстекло при минимуме стали и алюминия, то в действительности коэффициент пропускания излучения через калориметр выше, чем коэффициент пропускания через гамма-фильтр на поверхности детектора гамма-излучения.



Рис. 22.6. Маундская система для одновременного калориметрического измерения мощности и гамма-спектрометрического определения изотопного состава. Сбоку виден германиевый детектор, при измерении размещаемый напротив корпуса калориметра. (Фотография предоставлена Маундской лабораторией)

Типичное время анализа с применением методов прогнозирования конечной точки составляет 5 ч, неопределенность результатов калориметрического измерения мощности — 0,3 % [14]. Данные по изотопным гамма-измерениям накапливаются за тот же период времени, в течение которого проводится измерение тепловой мощности. Полная неопределенность анализа составляла 1 % или менее. Сведения о рабочих характеристиках приведены в табл. 22.6.

Как калориметр, так и многоканальный анализатор гамма-спектрометра управляются микропроцессором, а данные анализа обрабатываются компьютером. Система выполнена таким образом, что данные от одного образца могут анализироваться, когда выполняется измерение другого образца. Однако при совместном измерении имеет место некоторая потеря точности измерений, т.к. образец не может быть размещен непосредственно напротив гамма-детектора. Последовательные измерения обычно предпочтительнее, чем совместные, если нет других более серьезных ограничений.

Таблица 22.6 – Рабочие характеристики Маундского калориметра для совместных измерений изотопов при предполагаемой мощности 2,3 мВт/г [14]

Суммарная погрешность, %	1,0
Погрешность определения мощности, %	0,3
Диапазон измерений	
масса, кг	0,2–4,4
тепловая мощность, Вт	0,5–10
Время анализа с прогнозированием конечной точки, ч	5

22.4.3 Серийные калориметры завода Рокки Флэтс

На заводе Рокки Флэтс были разработаны многокамерные калориметры для анализа оксидов и скрапа плутония низкого выгорания [15]. Эти калориметры относятся к типу двухэлементных мостовых калориметров с воздушным зазором между внутренней камерой для образца и внешней водяной ванной, предназначенным для поддержания теплового равновесия между ними. Банки с оксидом плутония, содержащие приблизительно 1400 г, загружаются в медные держатели, которые размещаются в измерительных камерах. Для изоляции над и под образцом помещаются заглушки из стирофома. Выходная тепловая мощность каждой банки составляет примерно 3 Вт. Непосредственно после разделения америция от плутония 78 % выходной мощности создаются ^{239}Pu , 18 % — ^{240}Pu , а остальная часть мощности — ^{238}Pu и ^{241}Pu . Погрешность калориметрического анализа мощности образца составляет примерно 0,2 %.

Для управления производственной загрузкой образцов, требующих проведения анализа, в наличии имеются три восьмиблочных калориметра [16]. Каждый из них содержит восемь камер, размещенных по кругу в общей водяной ванне. Семь камер используются для анализа образцов, а одна является общей эталонной камерой.

Для новой установки по переработке плутония в Рокки Флэтс Маундской лабораторией была создана серия производственных калориметров и установлена под перчаточными боксами в зоне приема/передачи [17]. Двадцать камер сое-

динены в четыре блока по пять камер в каждом, причем каждый блок имеет свою собственную водяную ванну. В каждом блоке одна из камер служит в качестве общей эталонной камеры для четырех других камер для образца. Каждая камера для образца может достигать состояния равновесия примерно за 10 ч при тепловой мощности образца 4 Вт. Общая воспроизводимость измерений для всех камер составляет около 0,7 %.

Большие размеры контейнеров, длительное время достижения равновесия или плохо известный изотопный состав образца отрицательно влияют на калориметрический анализ скрапа и отходов плутония, встречающихся в технологическом процессе. Крайний случай имел место при анализе неочищенных солевых остатков, содержащих плутоний и до 10 % америция. В таких остатках америций может давать от 50 до 80 % всей тепловой мощности. Поэтому для определения содержания плутония необходимо тщательное гамма-измерение отношения америция к плутонию в неоднородных материалах, содержащих большие куски плутония со значительным эффектом самоослабления. Эти измерения включают в себя измерение изотопного состава при вращении и сканировании образца по спирали, и определение поправочного коэффициента на самопоглощение гамма-излучения для америция и плутония [8]. Удельная мощность определяется со сходимостью около 1 %, а мощность образца — со сходимостью около 0,2 % (1 σ). Хотя это еще не обосновано, но суммарная погрешность анализа лучше, чем получаемая при пассивном гамма- или нейтронном анализе, и приводит к меньшему искажению инвентаризационной разности [18].

22.4.4 Маундские градиентные мостовые калориметры

Для установки по переработке плутониевого скрапа на заводе в Саванна-Ривер были поставлены четыре компактных градиентных мостовых калориметра Маундской лаборатории [19]. Они установлены в помещении для анализа образцов и применяются для получения информации о массе поступающего металлического плутония и отправляемого оксида плутония, которая является учетной и обрабатывается компьютером. Четыре калориметра (рис. 22.7) связаны теплоизолированными водяными шлангами с четырьмя отдельными водяными резервуарами с контролируемой температурой. Два калориметра имеют следующие внешние габариты: диаметр 31 и высоту 97 см и вмещают стандартные банки диаметром 12,4 см. Другие два калориметра имеют диаметр 29 и высоту 93 см и вмещают банки диаметром до 11,0 см, благодаря чему меньшие образцы могут быть проанализированы с более короткими временами достижения равновесия.

Конструкция каждого калориметра [20] аналогична градиентной мостовой конструкции, показанной на рис. 21.6 и описываемой в разделе 21.5.4 главы 21. Тепловые заглушки сверху и снизу камеры для образца изготовлены из стирофома. Вес образца передается на пол через центральную опору, поэтому на точность считывания потенциала моста не влияет деформация витков. Образец помещается в специальную банку из нержавеющей стали с кольцевым уплотнением, которая жестко фиксируется в камере для образца. Насколько возможно, воздушные зазоры между образцом и внутренней стенкой этой "калориметрической банки" заполняются алюминиевой дробью для уменьшения времени анализа, а воздушные зазоры над образцом для предотвращения циркуляции воздуха заполняются смятой алюминиевой фольгой. Время, необходимое для достижения равновесия, зависит от диаметра образца, упаковки и ширины любого из воздушных зазоров.



Рис. 22.7. Комплект из четырех Маундских градиентных мостовых калориметров. Два калориметра имеют камеры для образцов диаметром 11 см, а два другие — камеры для образцов диаметром 12,4 см.

Четыре калориметра работают в режиме сервоконтроля постоянной температуры [20]. Температура водяной ванны контролируется с точностью $0,001\text{ }^{\circ}\text{C}$ и проверяется через каждые 2 мин. Температура воды выбирается так, чтобы соотношение между температурами нагревания и охлаждения составляло около 1,1. В каждом резервуаре используется приблизительно одна чашка дистиллированной воды за неделю. Блок электроники содержит пять управляемых компьютером цифровых вольтметров, по одному на каждый выход мостовой схемы и один — для наблюдения за температурой помещения. Каждая обмотка нагревателя подключена как резистор с четырьмя выводами, поэтому напряжение на витках может быть определено без погрешностей, обусловленных потерями мощности в проводах.

Для установления уровня мощности пустой камеры работа каждого калориметра требует периодических измерений базового уровня мощности [20], которые обычно занимают 2-2,5 ч, что меньше, чем при анализе образца. Базовый уровень мощности (около 15 Вт) устанавливается по крайней мере на 3 Вт больше, чем оцененная мощность реальных образцов или градуировочных источников. Калориметры снабжены небольшими образцовыми источниками теплоты $^{238}\text{PuO}_2$, установленными в специальные банки. Эти источники периодически измеряются с целью контроля рабочих характеристик прибора. Работа калориметра может быть нарушена, если калориметр подвергался механическому ударам, если его крышка была сдвинута во время проведения анализа, если происходят колебания температуры и влажности помещения, температуры ванны или напряжения источника питания. Для плутониевого скрапа время анализа может изменяться в широких пределах в зависимости от состава образца, его упаковки, размера и мощности. Для типичного диапазона тепловой мощности от 2 до 12 Вт погреш-

ность калориметрического измерения составляет 0,2 % [21]. Рабочие характеристики градиентных мостовых калориметров сведены в табл. 22.7.

Таблица 22.7 – Рабочие характеристики Маундских градиентных мостовых калориметров [10, 21]

Погрешность при мощности 2 Вт, %	0,5
Сходимость, %	0,1
Диапазон измерений	
масса, кг	0,5–5
тепловая мощность, Вт	2–12
Время анализа	
для продукта, ч	4
для скрапа, ч	8–16

22.5 КАЛОРИМЕТРЫ ДЛЯ ТОПЛИВНЫХ СТЕРЖНЕЙ

22.5.1 Аргоннский калориметр для топливных стержней

Аргоннский калориметр для топливных стержней длиной 1 м предназначен для неразрушающего анализа содержания плутония в необлученных топливных стержнях из смешанного оксидного топлива [22]. Прототипом этого прибора является Аргоннский калориметр более ранней разработки, используемый для калориметрического анализа топливных стержней длиной 15 см [23]. Был также создан калориметр для топливных стержней длиной 4 м [24]. Измерения на этих приборах относительно непродолжительны вследствие небольшого диаметра камеры для образца, и поэтому эти калориметры называются калориметрами с "быстрым откликом".

Эта система калориметрического анализа содержит следующие компоненты (рис. 22.8) [25, 26]:

1. *Корпус калориметра.* Калориметр для топливных стержней длиной 1 м представляет собой изотермический градиентный воздушный калориметр (см. раздел 21.5.4 главы 21), который работает в режиме сервоконтроля (см. раздел 21.6.3). Калориметр имеет три области регулируемой температуры: камера для образца диаметром 1 см, окружающая тепловая защита и схема нагрева, а также остальной объем корпуса. Температура в этих трех областях контролируется на уровне 33, 32 и 30 °С, соответственно.
2. *Нагреватель предварительного нагрева.* Нагреватель предварительного нагрева связан с корпусом калориметра и служит для нагрева стержней до их введения в измерительную камеру. Он сокращает время анализа и снабжен дополнительным пространством для размещения стержней длиной свыше 1 м.
3. *Пульт управления.* Пульт управления содержит схемы сервоконтроля, органы управления датчиком температуры и другие органы управления электрическими измерениями.
4. *Компьютер.* Сбор данных, анализ и вывод результатов измерений управляются небольшим портативным компьютером.



Рис. 22.8. Аргонная калориметрическая система для топливных стержней (модель 4 для топливных стержней длиной 1 м), содержащая калориметр (слева), нагреватель предварительного нагрева (длинный белый цилиндр) и блок электроники. (Фотография предоставлена Аргонской национальной лабораторией)

Эффективная длина топливных стержней, которая допустима для этого прибора, составляет 98 см. Более длинные топливные стержни должны анализироваться сегментами длиной по 1 м. Вдоль оси калориметра отклик на источники теплоты не линеен. Поэтому должна вводиться поправка на длину стержня и его положение [22]. Кроме того, при определении базового уровня мощности необходимо вставлять в камеру пустой топливный стержень для имитации потерь тепла на концах. Работа калориметра может контролироваться внутренней электрической градуировкой или градуировкой с использованием электрически нагреваемых резистивных стержней.

Полевые испытания и оценка калориметра для топливных стержней проводились на нескольких установках в Бельгии при сотрудничестве с МАГАТЭ [27 и 28]. На одной из установок производились измерения топливных стержней четырех различных геометрий, содержащих плутоний в количестве от 3,6 до 28,5 г, которые имели три различных изотопных состава. Все 12 топливных стержней предварительно нагревались, а затем производилось измерение в течение 1 ч, при этом каждому измерению предшествовало измерение базового уровня мощности в течение 1 ч. Сходимость результатов измерений составила 1 мВт в диапазоне от 10 до 135 мВт. Для стержней с мощностью более 50 мВт наблюдаемая точность составила порядка 3 % (1σ) или меньше, что находилось в пределах погрешности измерений и неопределенности определения действительной массы плутония [27].

Измерения еще для двух партий из 6 и 11 топливных стержней из смешанного оксидного топлива проводились на двух других бельгийских установках. Некоторые из топливных стержней имели длину 2,5 м; неактивная часть таких стержней находилась внутри нагревателя предварительного нагрева. Для всех типов топливных стержней, для которых разрабатывался калориметр, калориметр работал хорошо и сходимость результатов измерений составила около 0,4 %. Для стержней с низким выходом тепловой мощности результаты измерений оказались недостоверными. Использование калориметра для топливных стержней длиной 1 м для стержней с выходной мощностью меньше 40 мВт не рекомендуется, так как выходная мощность составляла бы менее 5 % от базового уровня мощности [28]. Сведения о рабочих характеристиках Аргонского калориметра для топливных стержней длиной 1 м приведены в табл. 22.8.

Таблица 22.8 – Рабочие характеристики Аргонского калориметра для топливных стержней длиной 1 м при предполагаемой удельной мощности 5 мВт/г и известном изотопном составе [27 и 28]

Погрешность, %	1-3
Сходимость	
относительная, %	0,4
абсолютная	
масса, г	0,2
тепловая мощность, мВт	1
Диапазон измерений	
масса плутония, г	8–160
тепловая мощность, мВт	40–800
Время анализа, мин	15–120

22.5.2 Калориметр фирмы "Дженерал Электрик" для облученных топливных сборок

Установка фирмы "Дженерал Электрик" для хранения облученного топлива недалеко от г.Моррис, штат Иллинойс, оснащена бассейновым калориметром для подводных измерений теплоты, вырабатываемой облученными топливными сборками [29]. Калориметр по габаритам и форме идентичен калориметру с выкипающей водой, разработанному ранее Тихоокеанской северозападной лабораторией для надводных измерений в горячих камерах [30]. Калориметр фирмы "Дженерал Электрик" работает в незагруженной нише бассейнового хранилища топлива на глубине около 12 м. Хотя калориметр разрабатывался для получения информации о генерации теплоты при планировании будущих потребностей по хранению облученного топлива, он также способен обеспечить корреляционную зависимость измеренной теплоты с глубиной выгорания топлива.

Длина бассейнового калориметра (рис. 22.9) составляет 4,6 м и он состоит из двух концентрических стальных труб [29]. Внутренняя труба диаметром 41 см образует камеру для образца, в которой могут быть установлены вставки для поддержания топливныхборок реактора на кипящей воде, либо топливныхборок реактора с водой под давлением. Для снижения теплопередачи из калориметра в воду бассейна кольцевой зазор между двумя трубками содержит пенополиуретановую изоляцию толщиной 6 см. Измерения температуры внутри камеры для образца и вне калориметра осуществляются с помощью платиновых резистивных датчиков температуры. Рециркуляционный насос поддерживает однородность температуры воды внутри камеры для образца. Для измерения радиационных потерь и осевых профилей выгорания топливныхборок на калориметре установлены датчики гамма-излучения.

Калориметр обычно работает со средой, имеющей постоянную температуру. После загрузки топливныхборок в калориметр камера для образца закрывается с помощью водонепроницаемой крышки [29]. Подъем температуры воды калориметра контролируется в течение 5 ч. Температура воды вне калориметра обычно стабилизируется в пределах 0,2 °С, если обеспечивается циркуляция воды в бассейне. Скорость изменения температуры внутри калориметра (обычно 4 °С/ч)

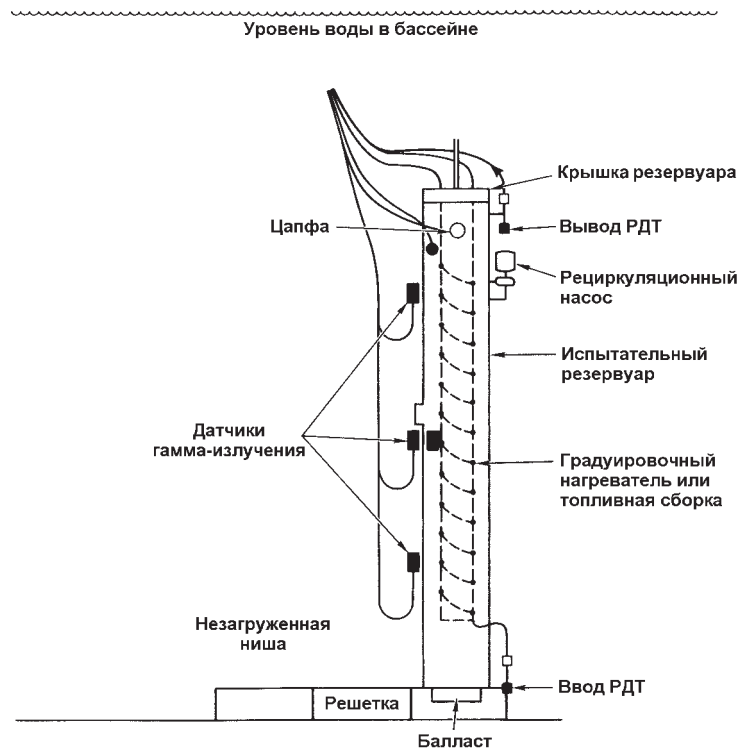


Рис. 22.9. Бассейновый калориметр фирмы “Дженерал Электрик” в г.Моррис для измерения облученных топливных сборок в незаполненной нише бассейна хранения топлива. (РДТ — платиновый резистивный датчик температуры). (Рисунок предоставлен отделением фирмы “Дженерал Электрик” в г.Моррис)

пропорциональна тепловой мощности топливной сборки. Калориметр градуируется с помощью четырехметровой трубы, обмотанной лентой электронагревателя. Все измерения корректируются на потери мощности в проводах нагревателя, изменения теплоемкости между используемым для градуировки и реальным топливом, радиальные потери тепла.

В работе [29] сообщается о серии из 24 измерений для 14 топливныхборок реактора с водой под давлением с заявленным оператором выгоранием от 26 до 40 ГВт-сут/т урана и временами охлаждения от 4 до 8 лет. Бассейновый калориметр измерял тепловую мощность в диапазоне от 360 до 940 Вт со сходимостью 1 %. Измеренная мощность сравнивалась с рассчитанной по данным выгорания реакторного топлива. Разброс данных составляет от 15 % (если программы анализа предполагали непрерывный цикл облучения) до 1 % (если программы анализа использовали действительные данные истории облучения). Дляборок с одинаковым временем охлаждения измеренная мощность была пропорциональна выгоранию с погрешностью около 3 %.

ЛИТЕРАТУРА

1. C. Fellers, W. Rodenburg, J. Birden, M. Duff, and J. Wetzel, “Instrumentation Development for the Enhanced Utilization of Calorimetry for Nuclear Material As-

- say," in Proc. American Nuclear Society Topical Conference on Measurement Technology for Safeguards and Materials Control, Kiawah Island, South Carolina, November 26-28, 1979, NBS Special Publication 582 (1980), p.192.
2. W. Rodenburg, "An Evaluation of the Use of Calorimetry for Shipper-Receiver Measurements of Plutonium," Mound Laboratory report MLM-2518, NUREG/CR-0014 (1978).
 3. C. Roche, R. Perry, R. Lewis, E. Jung, and J. Haumann, "ANL Small-Sample Calorimeter System Design and Operation," Argonne National Laboratory report ANL-NDA-1 (1978).
 4. C. Roche, R. Perry, R. Lewis, E. Jung, and J. Haumann, "A Portable Calorimeter System for Nondestructive Assay of Mixed-Oxide Fuels," American Chemical Society Symposium Series, No.79 (1978).
 5. W. Rodenburg, "Test and Evaluation of an ANL Small-Sample Calorimeter," Mound Laboratory report MLM-2813 (1981).
 6. C. Roche, R. Perry, R. Lewis, E. Jung, and J. Haumann, "Calorimetric Systems Designed for In-Field Nondestructive Assay of Plutonium-Bearing Materials", International Atomic Energy Agency/Argonne National Laboratory report IAEA-SM-231/78 (1978).
 7. J. Lemming, W. Rodenburg, D. Rakel, M. Duff, and J. Jarvis, "A Field Test of a Transportable Calorimetric Assay System," *Nuclear Materials Management IX* (2), 109 (1980).
 8. R. Perry, C. Roche, A. Harkness, G. Winslow, G. Youngdahl, R. Lewis, and E. Jung, "The Bulk Assay Calorimeter: Part 1. System Design and Operation, Part 2. Calibration and Testing," Argonne National Laboratory report ANL-NDA-9 (1982).
 9. R. Perry and A. Keddar, "Field Test of the Bulk-Assay Calorimeter," Argonne National Laboratory report ANL-NDA-11 (1982).
 10. G.M. Wells and F.J.G. Rogers, "Measurements of Plutonium Mass Using an Argonne Bulk Calorimeter," United Kingdom Atomic Energy Agency report NMACT (86) (1986), p.8.
 11. F. O'Hara, J. Nutter, W. Rodenburg, and J. Haumann, "Calorimetry for Safeguard Purposes," Mound Laboratory report MLM-1798 (1972).
 12. W. Rodenburg, "Some Examples of the Estimation of Error for Calorimetric Assay of Plutonium-Bearing Solids," Mound Laboratory report MLM-2407, NUREG-0229 (1977).
 13. W. Strohm, W. Rodenburg, and R. Carchon, "Demonstration of Calorimetric Assay of Large Mass, High Burn-Up PuO₂ Samples," *Nuclear Materials Management XIII* (Proceedings Issue), 269 (1984).
 14. D. Rakel, J. Wetzel, and T. Elmont, "A Field Test and Evaluation of the Simultaneous Calorimetric Assay System," in Proc. Twenty-Fifth Annual Meeting of the Institute of Nuclear Materials Management, Columbus, Ohio, July 1984.
 15. F.L. Oetting, "Calorimetry at Dow Rocky Flats," in "Proceedings of the Symposium on Calorimetric Assay of Plutonium, October 1973," Mound Laboratory report MLM-2177 (1974), p.66.

16. R.B. White and F.L. Oetting, "An Eight-Unit Isothermal Calorimeter," USAEC RFP-1401, Rocky Flats (1969).
17. F. Haas, J. Gilmer, G. Goebel, J. Lawless, J. Pigg, D. Scott, and A. Tindall, "Implementation of NDA Instrumentation in the Rocky Flats Processing Facility," in *Proc. ANS/INMM Conference on Safeguards Technology: The Process Safeguards Interface*, Hilton Head Island, South Carolina, November 28-December 2, 1983 (1984), p.106.
18. J.G. Fleissner, "NDA of Plutonium in Isotopically Heterogeneous Salt Residues," in *Proc. ANS/INMM Conference on Safeguards Technology: The Process Safeguards Interface*, Hilton Head Island, South Carolina, November 28-December 2, 1983 (1984), p.275.
19. M.P. Baker, "An Integrated Nondestructive Assay System for a New Plutonium Scrap Recovery Facility," in *Proc. of the 7th Annual Symposium on Safeguards and Nuclear Materials Management*, ESARDA, Liege, Belgium, May 21-23, 1985 (1985), pp.109-112.
20. J. Wetzel, "Calorimeter System Users Manual for the SRP/NSR Facility," Mound Laboratory informal report, May 1986.
21. M.F. Duff, J.R. Wetzel, and J.F. Lemming, "Calorimetry Design Considerations for Scrap Assay," *American Nuclear Society Transaction* 50, 170 (1985).
22. R.B. Perry et al., "One-Meter Fuel Rod Calorimeter Design and Operating Manual," Argonne National Laboratory report ANL-NDA-4 (1981).
23. N.S. Beyer, R.N. Lewis, and R.B. Perry, "Small Fast-Response Calorimeters Developed at Argonne National Laboratory for NDA of Plutonium Fuel Rods," in "Proceedings of the Symposium on Calorimetric Assay of Plutonium, October 1973," Mound Laboratory report MLM-2177 (1974).
24. S. Brumbach, A. Finkbeiner, R. Lewis, and R. Perry, "Design and Construction Effort for the Four-Meter Fuel Rod Calorimeter," in "Plutonium Calorimetry and SNM Holdup Measurements Progress Report," Argonne National Laboratory Report ANL-77-8 (1977).
25. N.S. Beyer, R.B. Perry, and R.N. Lewis, "Advances in Fuel Rod Calorimetry with the ANL FFTF Calorimeter," *Nuclear Materials Management* IV (3), 577 (1975).
26. N.S. Beyer, R.N. Lewis, and R.B. Perry, "Fast-Response Fuel Rod Calorimeter for 36 inch Fuel Columns," *Nuclear Materials Management* III, 118 (1974).
27. W. Rodenburg and A. Keddar, "Test and Evaluation of the One-Meter Fuel Rod Calorimeter at Mol, Belgium, June 1981," Mound Laboratory report MLM-3003 (1982).
28. R.B. Perry and A. Keddar, "Field Test of the One-Meter Fuel Rod Calorimeter," Argonn National Laboratory report ANL-NDA-10 (1982).
29. B. Judson, J. Doman, K. Eger, and Y. Lee, "In-Plant Test Measurements for Spent-Fuel Storage at Morris Operation," General Electric Company Report NEDG-24922-3 (1982).
30. J. Creer and J. Shupe, Jr., "Development of a Water Boil-Off Spent-Fuel Calorimeter System," Pacific Northwest Laboratory report PNL-3434 (1981).

Глава 23

Руководство по применению методов неразрушающего анализа

*Н. Энслин, Д. Райлли и Х. Смит, мл.
(Переводчик И. Н. Сазонов)*

23.1 ВВЕДЕНИЕ

Эта глава представляет собой руководство по применению методов неразрушающего анализа (НРА) ядерных материалов и предназначена в помощь пользователю при подборе аппаратуры в соответствии с задачами контроля ядерных материалов. Рисунки и таблицы этой главы соответствуют большинству методик измерений, описанных в этой книге, кроме того, в этой главе также рассматриваются несколько важных активных методов. Дополнительная информация по активным методам НРА, используемых в Комиссии США по ядерному регулированию, приведена в руководстве Ц. Гозани “Активный неразрушающий анализ ядерных материалов” [1]. Детальное описание измерительных методов НРА приведено в книге Комиссии по ядерному регулированию “Руководство по методам измерений для обеспечения ядерных гарантий” под редакцией Д.Р. Роджерса [2].

На рис. 23.1 приведен перечень методик НРА, включая примеры некоторых наиболее часто используемых приборов, относящихся к каждой методике. Рисунок показывает многообразие методик, доступных для исследователя. На разных стадиях ядерного топливного цикла плутоний и уран присутствуют в различных формах и это часто затрудняет для пользователя выбор методики, подходящей для задач его измерений. Настоящее руководство предназначено помочь в решении этой проблемы путем обобщения принципиальных возможностей методик гамма- и нейтронного анализа (раздел 23.2) и предоставлением подробной таблицы для подбора подходящей аппаратуры НРА для заданных ядерных материалов (раздел 23.3).

В данном руководстве не рассматриваются измерения облученного топлива, мониторы для контроля периметра ядерных установок, качественные измерения и измерения отложений; этим вопросам посвящены главы 18, 19 и 20.

23.2 ВОЗМОЖНОСТИ НЕКОТОРЫХ ПАССИВНЫХ И АКТИВНЫХ МЕТОДИК НЕРАЗРУШАЮЩЕГО АНАЛИЗА

Гамма-излучение выделяется при радиоактивном распаде и несет энергетическую информацию, которая однозначно идентифицирует изотопы, присутствующие в образце. Эта информация обычно сохраняется в процессе детектирования. Принципиальной трудностью для гамма-методов анализа является введение точных поправок на ослабление в образце. Ослабление гамма-излучения увели-

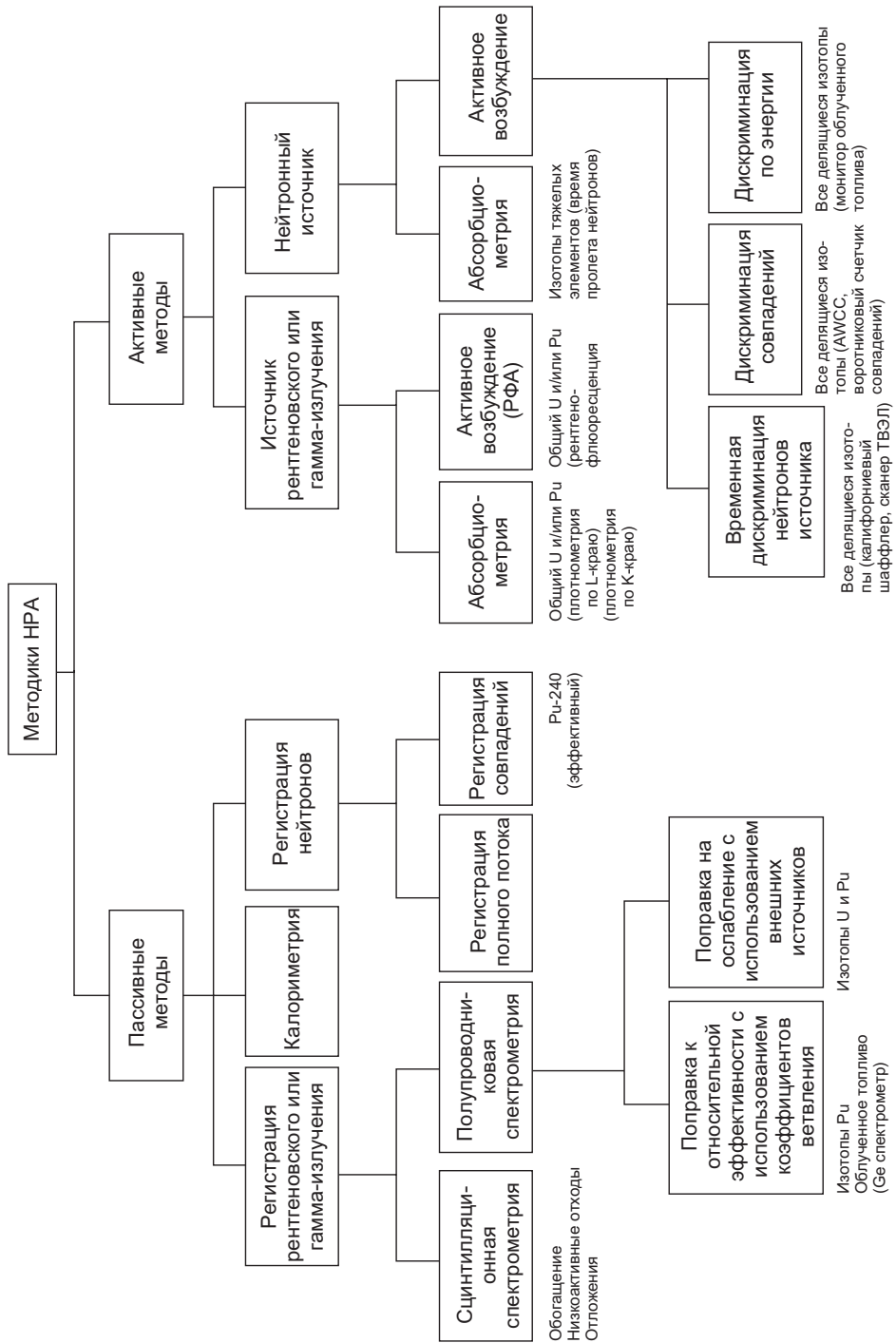


Рис.23.1. Обзор пассивных и активных методов неразрушающего анализа, включая наименование некоторых широко применяемых приборов

чивается с ростом атомного номера Z и плотности материала ρ , поэтому методики анализа по гамма-излучению лучше работают для материалов с низким атомным номером ($Z < 25$) и низкой плотностью ($\rho < 1 \text{ г/см}^3$). Нейтроны несут ограниченную энергетическую информацию, но даже она обычно теряется при типичном процессе детектирования. Нейтронное излучение не предоставляет информации для идентификации разновидностей ядерных материалов, присутствующих в образце. С другой стороны, нейтроны легко проникают сквозь материалы с высоким атомным номером и большой плотностью (например, свинец и уран). Значительно больше трудностей возникает для материалов с низкими атомными номерами, особенно содержащих водород, таких как вода или полиэтилен. Таким образом, гамма- и нейтронные методы дополняют друг друга вследствие их различной чувствительности к плотности и типу материала. В основном пассивные методы хорошо работают с плутониевыми образцами, т.к. плутоний имеет высокую удельную активность (при альфа-распаде и спонтанном делении). Очень низкая удельная активность обоих видов распада урана часто заставляет использовать активные методики измерения.

Рисунки в этом разделе дают представление о точности, которая может быть достигнута при анализе одиночного образца с использованием основных методик НРА. Рис. 23.2 иллюстрирует "контролепригодность" различных форм материалов при использовании методик гамма-спектрометрии. Наиболее точно могут быть проанализированы гомогенные материалы с низкой плотностью, такие как газы, растворы и порошки. Для этих материалов предпочтительны методики на основе анализа гамма-излучения, т.к. наблюдаемые спектральные пики имеют уникальные характеристики, которые позволяют идентифицировать присутствующие изотопы ядерных материалов, а также количественно определять массу изотопа. Важно отметить, что гамма-спектрометрия обеспечивает четкую идентификацию разновидностей изотопов в образце даже в случаях, когда образец имеет высокую плотность или очень неоднороден, что затрудняет точное определение массы.

Для неоднородных или высокоплотных материалов, в которых ослабление гамма-излучения слишком велико для получения точных поправок, более предпочтительными могут быть нейтронные методы анализа. Рис. 23.3 иллюстрирует "контролепригодность" различных форм материалов при использовании методик регистрации нейтронов. Для большинства крупных образцов металлов, оксидов, высокоплотного скрапа (скрап — отбракованный ядерный материал, удаленный из технологического процесса и предназначенный для дальнейшей переработки — прим. ред.) и отходов необходимо применение нейтронных методик. Точность нейтронного анализа ухудшается, если имеется высокий фон от (α, n) -реакций или в отходах присутствуют замедляющие материалы, такие как влага или органические соединения.

Калориметрия представляет собой другой, более медленный, но более точный метод анализа плутония, который нечувствителен к присутствию материалов матрицы (за исключением того, что материалы матрицы могут увеличить время, необходимое для достижения теплового равновесия). Как калориметрия, так и нейтронные методы обычно требуют знания изотопного состава измеряемого плутония; одним из способов измерения изотопного состава является гамма-спектрометрия.

Рис. 23.4 и 23.5 показывают области применения наиболее распространенных методик гамма- и нейтронного анализа. В общем случае, гамма-методики,

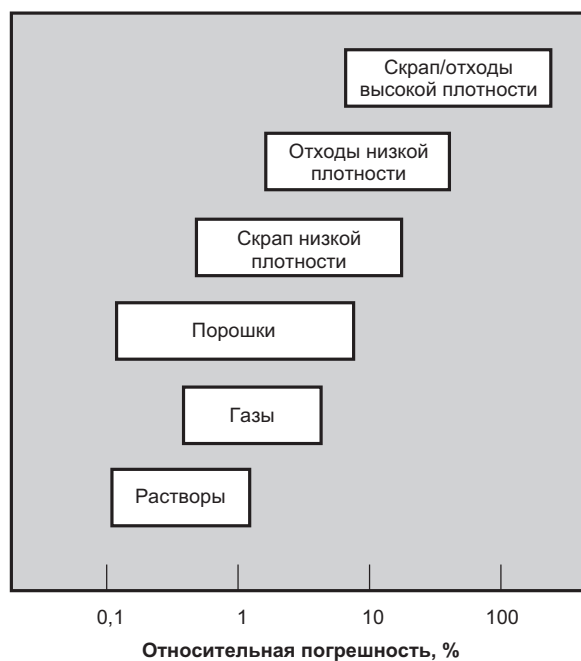


Рис.23.2. “Контролепригодность” образцов для использования методик гамма-спектрометрии. Для сравнения: методики разрушающего химического анализа достигают погрешности в диапазоне от 0,05 до 0,5 %.

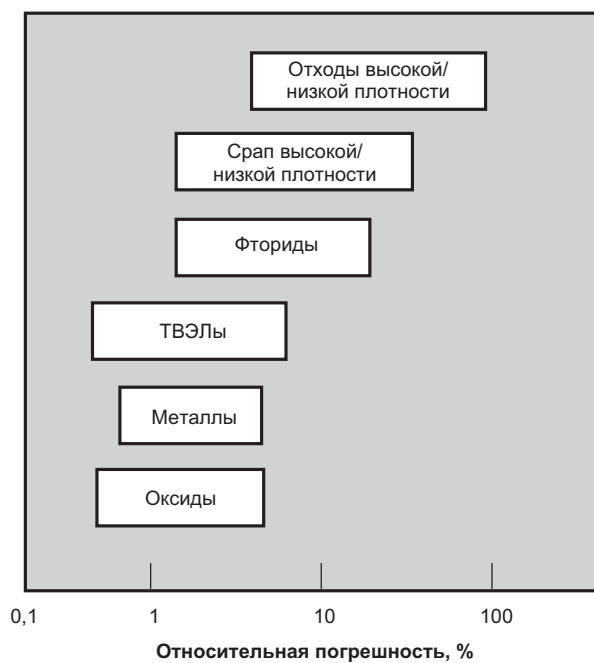


Рис.23.3. “Контролепригодность” образцов для использования методик нейтронного неразрушающего анализа

там, где они применимы, более точны, чем нейтронные методики. Аналогично, пассивные методики анализа часто более точны, чем активные, в которых матрица образца может влиять как на возбуждающее, так и на наведенное (анализируемое) излучение, тем самым снижая чувствительность и точность анализа.

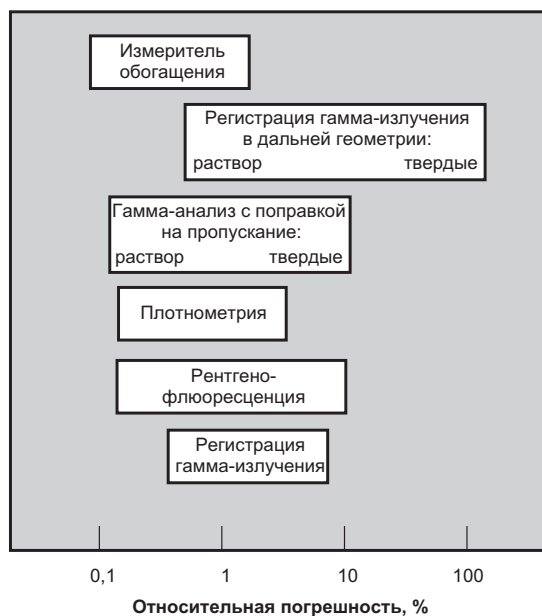


Рис. 23.4. Области применения неразрушающего анализа по гамма-излучению

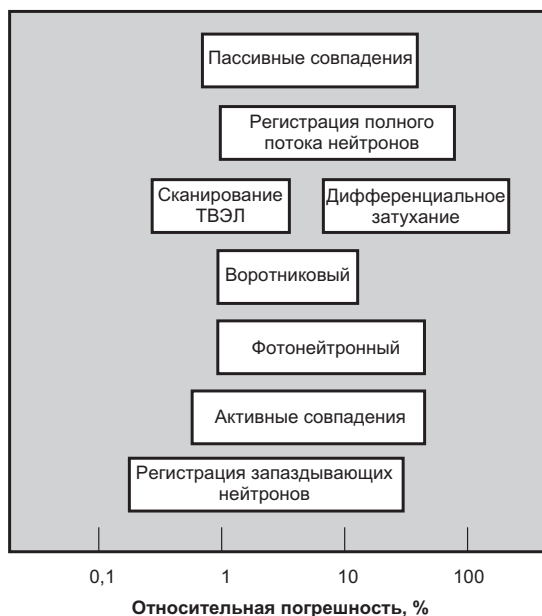


Рис. 23.5. Области применения неразрушающего анализа по нейтронному излучению

23.3 ТИПЫ ЯДЕРНЫХ МАТЕРИАЛОВ И ПРИМЕНИМЫЕ МЕТОДИКИ НЕРАЗРУШАЮЩЕГО АНАЛИЗА

Табл. 23.1 содержит перечень методик НРА, которые могут быть использованы для измерений ядерных материалов. Несмотря на свой большой объем, табл. 23.1 не является всеобъемлющей, но каждый ее элемент фактически является обобщением нескольких возможных методик. Таблица может служить для пользователя отправной точкой при выборе подходящей методики. Более детальные таблицы приведены в “Руководстве по методам измерений для обеспечения ядерных гарантий” [2]. Ниже приведены пояснения к заголовкам столбцов таблицы.

Ядерный материал. В табл. 23.1 рассмотрены следующие типы ядерных материалов:

- плутоний;
- высокообогащенный уран (ВОУ);
- низкообогащенный уран (НОУ);
- смесь урана и плутония.

Форма или матрица материала. В табл. 23.1 указаны методики анализа для следующих форм и матриц ядерных материалов:

- металл;
- оксид;
- фторид;
- растворы;
- топливные таблетки;
- тепловыделяющие элементы (ТВЭЛ);
- тепловыделяющие сборки (ТВС);
- скрап и отходы высокой плотности;
- скрап и отходы низкой плотности.

К анализу карбидов в большинстве случаев подходы те же самые, что и к оксидам. Для фторидов методики, применяемые для анализа газообразных UF_6 или PuF_6 и других, применимы также для PuF_6 , PuF_4 , UF_6 или UO_2F_2 в жидкой, твердой или порошкообразной формах. Для нейтронных методов анализа оксиды имеют низкий, а фториды — высокий выход нейтронов (α, n)-реакций. Скрап относительно богат ядерными материалами и обычно перерабатывается, тогда как содержание ядерных материалов в отходах относительно низкое и обычно они могут быть захоронены. Скрап и отходы могут быть пригодны для гамма-анализа, если имеют относительно низкую плотность.

Методики НРА. В табл. 23.1 приведены следующие методики и оборудование НРА:

Гамма-анализ

- Анализ в дальней геометрии без введения поправок на пропускание излучения — многоэнергетическая система гамма-анализа MEGAS (MultiEnergy Gamma Assay System).

- Анализ с поправкой на пропускание излучения с учетом структуры образца.
- Сегментное сканирование с поправкой на пропускание излучения — сегментный гамма-сканер SGS (Segmented Gamma Scanner).
- Счетчик гамма-излучения колодезного типа.
- Измерение обогащения урана (содержания изотопа ^{235}U).
- Определение изотопного состава плутония.
- Плотнометрия по К-краю.
- Плотнометрия по L_{III} -краю.
- Рентгенофлуоресценция по К- или L-линии.

Нейтронный анализ

- Измерение полного потока нейтронов — направленный нейтронный зонд SNAP (Shielded Neutron Assay Probe).
- Измерение полного потока нейтронов — счетчик нейтронов с 4π -геометрией.
- Пассивная регистрация нейтронных совпадений — высокоуровневый счетчик нейтронных совпадений HLNCC (High-Level Neutron Coincidence Counter).
- Пассивная регистрация нейтронных совпадений — счетчик для ТВЭЛ на смешанном уран-плутониевом топливе.
- Пассивная регистрация нейтронных совпадений — счетчик для ТВЭЛ быстрых реакторов-размножителей.
- Активная регистрация нейтронных совпадений — активный колодезный счетчик совпадений AWCC (Active Well Coincidence Counter).
- Активная регистрация нейтронных совпадений — активный воротниковый счетчик совпадений ANCC (Active Neutron Coincidence Collar).
- Активная регистрация нейтронных совпадений — активный сканер для ТВЭЛ.
- Регистрация совпадений быстрых нейтронов — счетчик нейтронов “Рэндом драйвер” (Random driver).
- Регистрация нейтронных совпадений с самоподсветкой.
- Регистрация запаздывающих нейтронов — калифорниевый шаффлер.
- Фотонейтронная подсветка — устройство фотонейтронной подсветки PHONID (PHOTOneutron Interrogation Device).
- Методика дифференциальной регистрации затухания нейтронов.

Калориметрия

- Калориметрия с дополнительным определением изотопного состава с помощью масс-спектрометрии или гамма-спектрометрии.

Существуют и другие методики НРА, не включенные в данный перечень, такие, как измерения с применением ускорителей, описанные в работе [1].

Для каждого ядерного материала и матрицы в таблицу включены только наиболее общеприменимые методики. Методики перечислены в порядке снижения

точности или частоты использования. Выбор методики может зависеть от особых требований к измерениям и от таких факторов, как стоимость, производительность, необходимая площадь для размещения и т.д.

Измеряемые изотопы. Методики НРА, перечисленные в табл. 23.1, могут определить:

- элемент или изотоп,
- массу или концентрацию элемента (изотопа).

Пользователю часто нужна дополнительная информация, обычно это изотопный состав. Такая информация может быть получена от изготовителя ядерного материала или с помощью других разрушающих или неразрушающих методов анализа.

Пассивная (П) или активная (А) методика. Этот столбец таблицы указывает на использование в активной методике внешнего источника нейтронного или гамма-излучения для облучения образца. Методика нейтронных совпадений самоподсветки, в которой регистрируются деления, вызванные нейтронами, образованными в (α, n) -реакциях, классифицируется как пассивная.

Диапазон. В этом столбце для методик НРА приведена очень грубая оценка диапазона применимости по массе или концентрации. Указанный нижний предел является скорее нижним пределом измерения, чем нижним пределом обнаружения, который может быть значительно меньше, чем масса, приведенная в таблице. Для диапазона использован термин *масса элемента*, даже если измеряется только один изотоп.

Время. Это приблизительное время измерения, необходимое для достижения заданной сходимости.

Сходимость. Это воспроизводимость в одинаковых условиях однократного измерения, определяемая как одно относительное стандартное отклонение, в процентах. Сходимость оценена для образцов средних размеров, а для активных методик — в предположении оптимальной мощности источника подсветки.

Погрешность. Погрешность измерения в процентах установлена как относительное стандартное отклонение и включает в себя погрешности, обусловленные сходимостью измерений, расположением образца, градуировкой и систематической погрешностью прибора. Для калориметрического анализа оценка погрешности включает в себя погрешность определения изотопного состава, которая часто является определяющей. Количественные нормы погрешности для скрапа и отходов предполагают некоторую сортировку и разделение материалов по категориям, а также подразумевает присутствие малых или слабопоглощающих включений ядерного материала.

Ссылки. Ссылки указывают номера разделов этой книги, в которых может быть найдена более подробная информация по приведенной измерительной методике. Ссылка типа "х.у" указывает на раздел "у" главы "х". Другим источником информации является библиография с [1] по [9].

Таблица 23.1 – Руководство по выбору методик НРА

Форма или матрица материала	Методика НРА	Измеряемые изотопы	Пассивная или активная	Диапазон	Время	Сходимость, %	Погрешность, %	Ссылка
<u>Плутоний</u>								
Металл	Калориметрия/масс-спектрометрия	Общий Pu	П	10-6000 г	4 ч	0,3	0,3	21.9
		Общий Pu	П	10-6000 г	4 ч	0,5	1-2	21.9
	Нейтронные совпад.(HILNCC)	Воспроизв.	П	10-6000 г	300 с	0,5	1-4	17.2
		Полн. поток нейтронов (SNAP)	Воспроизв.	П	10-6000 г	30 с	1	2
	Нейтронные совпад. (AWCC)	Делящиеся	А	10-10000 г	1 ч	5	5-10	17.3
	Гамма-спектрометрия	Весь без ²⁴² Pu	П	0,1-10000 г	30-60 мин	0,1-(3-5)	0,1-1	8.7.5
Оксиды	Калориметрия/масс-спектрометрия	Общий Pu	П	10-6000 г	4-6 ч	0,3	0,3	21.9
		Общий Pu	П	10-6000 г	4-6 ч	0,5	1-2	21.9
	Нейтронные совпад.(HILNCC)	Воспроизв.	П	10-6000 г	300 с	0,5	1-3	17.2
		Нейтронные совпад. (AWCC)	Делящиеся	А	10-10000 г	1 ч	5	10
	Гамма-спектрометрия	Весь без ²⁴² Pu	П	0,1-10000 г	30-60 мин	0,1-(3-5)	0,1-1	8.7.5

Продолжение таблицы 23.1

Форма или матрица материала	Методика НРА	Измеряемые изотопы	Пассивная или активная	Диапазон	Время	Сходимость, %	Погрешность, %	Ссылка
Плутоний								
Порошок	Полный поток нейтронов	Воспроизв.	П	1-500 г	30 с	1	2-5	15.2
PuF ₄	Нейтронные совпадения (самоподсветка)	Делящиеся	П	50-1000 г	600 с	1	5-10	20.4
Растворы	Гамма с поправкой на пропускание	Конц. ²³⁹ Pu	П	0,001-400 г/л	1000 с	0,2-1	0,2-1	6.9.4
	Плотнометрия по К-краю	Конц. Pu	А	40-500 г/л	1500 с	0,5	0,2-1	9.4
	Плотнометрия по L _{II} -краю	Конц. Pu	А	5-100 г/л	1500 с	0,5	0,2-1	9.4
	Рентгенофлюоресценция	Конц. Pu	А	0,1-400 г/л	300 с	0,5	0,3-1	10.5
	Нейтронные совпад. (HNLSS)	Воспроизв.	П	1-500 г	300 с	0,5	1-5	17.2
ТВЭЛ	Нейтронные совпадения (счетчик для лотков)	Воспроизв.	П	10-1000 г	600 с	1	0,5-2	[8]
ТВС	Нейтронные совпадения (счетчик для быстрых реакторов).	Воспроизв. /делящиеся	П	1-9 кг	300 с	0,2	0,5-2	[9]

Продолжение таблицы 23.1

Форма или матрица материала	Методика НРА	Измеряемые изотопы	Пассивная или активная	Диапазон	Время	Сходимость, %	Погрешность, %	Ссылка
Плутоний								
Скрап/отходы (высокой плотности)	Нейтронные совпадения (HNLNCC)	Воспроизв.	П	10-6000 г	300 с	1-5	2-30	17.2
	Калориметрия/масс-спектрометрия	Общий Pu	П	10-6000 г	8-16 ч	0,3	0,5	22.4
	Калориметрия/гамма-спектрометрия	Общий Pu	П	10-6000 г	8-16 ч	0,5	1-2	22.4
	Нейтронные совпадения (самоподсветка)	Делящиеся	П	50-3000 г	1000 с	1	10	20.4
Скрап/отходы (низкой плотности)	Сегментный гамма-сканер (SGS)	²³⁹ Pu	П	1-1400 г	1000 с	1	1-5	6.9.5
	Гамма-анализ в дальней геометрии (MEGAS)	²³⁹ Pu	П	1-1400 г	300 с	1-2	1-5	6.9
	Нейтронные совпад.(HNLNCC)	Воспроизв.	П	10-6000 г	1000 с	5	5-30	17.2
	Рентгеновский анализ	²³⁹ Pu	П	10 мкг-10 г	200 с	10	10-50	[2]
	Дифференциальное затухание	Делящиеся	A	5 мг-10 г	1000 с	1	30	[3]
ВОУ								
Металл	Калифорниевый шафлер	Делящиеся	A	1 г-10 кг	1000 с	0,1	0,5-5	[4]
	Нейтронные совпад. (AWCC)	Делящиеся	A	10 г-10 кг	1000 с	0,5-5	1-5	17.3
	Рэндом драйвер	Делящиеся	A	50 г-10 кг	1000 с	1-5	1-5	[5]
	Фогонейтронный (RHONID)	делящиеся	A	1 г-1 кг	200 с	0,1-3	1-5	[6,7]
	Измеритель обогащения	²³⁵ U (%)	П	200 г-20 кг	300 с	0,1-1	0,1-0,5	7.3

Продолжение таблицы 23.1

Форма или матрица материала	Методика НРА	Измеряемые изотопы	Пассивная или активная	Диапазон	Время	Сходимость, %	Погрешность, %	Ссылка
<u>VOU</u>								
Оксиды	Гамма с поправкой на пропускание	²³⁵ U	П	0,1-200 Г	300 с	1	1-2	6.9.3
	Измеритель обогащения	²³⁵ U (%)	П	200 Г-20 кг	100 с	0,1-1	0,1-0,5	7.3
	Калифорниевый шаффлер	Делящиеся	А	1 Г-20 кг	1000 с	0,1	0,3-3	[4]
	Нейтронные совпад. (AWCC)	Делящиеся	А	10 Г-20 кг	1000 с	1-5	1-5	17.3
	Рэндом драйвер	Делящиеся	А	50 Г-10 кг	1000 с	1-5	1-5	[5]
	Фотонейтронный (RHONID)	Делящиеся	А	1 Г-3 кг	200 с	0,1-3	1-5	[6,7]
	Полн.поток нейтронов (SNAP)	²³⁴ U	П	100 Г-10 кг	500 с	2-5	5-10	15.2
UF ₆ газообразный	Гамма с поправкой на пропускание	²³⁵ U	П	0,1-100 Г	1000 с	0,7	1	7.5
UF ₆ жидкий	Измеритель обогащения	²³⁵ U (%)	П	200 Г-20 кг	300 с	0,1-1	0,25	7.3
UF ₆ твердый	Нейтронные совпад. (AWCC)	Делящиеся	А	100-1000 Г	1000 с	1-5	1-5	[6]
	Нейтронные совпадения (самоподсветка)	Делящиеся	П	1-20 кг	600 с	0,5	3	17.3
	Полный поток нейтронов	²³⁴ U	П	10 Г-10 кг	200 с	2	2-5	15.2
	Измеритель обогащения	²³⁵ U (%)	П	200 Г-20 кг	300 с	0,2-1	0,5-5	7.7

Продолжение таблицы 23.1

Форма или матрица материала	Методика НРА	Измеряемые изотопы	Пассивная или активная	Диапазон	Время	Сходимость, %	Погрешность, %	Ссылка
<u>ВОУ</u>								
Растворы	Гамма с поправкой на пропускание	Конц. ²³⁵ U	П	0,001-400 г/л	1000 с	0,1-0,2	0,2-1	6.9
	Плотнометрия по К-краю	Конц. U	A	40-500 г/л	1500 с	0,5	0,2-1	9.4
	Плотнометрия по L _{III} -краю	Конц. U	A	5-100 г/л	1500 с	0,5	0,2-1	9.4
	Рентгенофлуоресценция	Конц. U	A	0,1-400 г/л	300 с	0,5	0,3-1	10.5
Топливные таблетки	Рэндом драйвер	Делящиеся	A	50 г-10 кг	1000 с	1-5	1-5	[5]
	Нейтронные совпад. (AWCC)	Делящиеся	A	10 г-10 кг	1000 с	1-5	1-5	17.3
	Калифорниевый шаффлер	Делящиеся	A	1 г-10 кг	1000 с	0,1-2	0,3-3	[4]
	Фогонейтронный (RHONID)	Делящиеся	A	1 г-3 кг	200 с	0,1-3	1-5	[6,7]
	Колодезный гамма-счетчик	²³⁵ U	П	0,1-10 г	300 с	0,2	0,1-0,5	7.3
	Измеритель обогащения	²³⁵ U (%)	П	200 г-20 кг	300 с	0,5	0,25-1	[2]
ТВЭЛ	Воротн.счетч.нейтрон.совпад.	Делящиеся	A	100 г-10 кг	1000 с	0,5	2-4	17.3
	Сканер ТВЭЛ	Делящиеся	A	1-100 г	30 с	0,1	1	[1]
Скрап/отходы (высокой плотности)	Калифорниевый шаффлер	Делящиеся	A	1 г-10 кг	1000 с	0,1-2	2-25	[4]
	Нейтронные совпад. (AWCC)	Делящиеся	A	10-1000 г	1000 с	1-5	5-25	17.3
	Рэндом драйвер	Делящиеся	A	50-1000 г	1000 с	1-5	5-25	[5]

Продолжение таблицы 23.1

Форма или матрица материала	Методика НРА	Измеряемые изотопы	Пассивная или активная	Диапазон	Время	Сходимость, %	Погрешность, %	Ссылка
ВОУ								
Скrap/отходы (низкой плотности)	Сегментный гамма-сканер (SGS)	²³⁵ U	П	1-200 г	1000 с	1	2-10	6.9.5
	Гамма с поправкой на пропускание	²³⁵ U	П	1-200 г	300 с	1	2-20	6.9.3
	Дифференциальное затухание	Делящиеся	A	5 мг-10 г	1000 с	1	30	[3]
	Калифорниевый шаффлер	Делящиеся	A	1-1000 г	1000 с	0,5	2-25	[4]
	Нейтронные совпад. (AWCC)	Делящиеся	A	10-1000 г	1000 с	1-5	5-25	17.3
НОУ								
Металл	Полный поток нейтронов (колодезный счетчик)	²³⁸ U	П	1-500 кг	1000 с	1	2-3	15.4
	Нейтрон. совп. (колод.счетчик)	²³⁸ U	П	2-500 кг	1000 с	2-5	2-5	15.4
	Нейтронные совпад. (AWCC)	Делящиеся	A	1-10 кг	1000 с	5	5-10	17.3
	Калифорниевый шаффлер	Делящиеся	A	10 г-10 кг	1000 с	1	1-2	[4]
	Фотонейтронный (RHONID)	Делящиеся	A	10-1000 г	200 с	0,1-3	1-5	[6,7]
	Измеритель обогащения	²³⁵ U (%)	П	200 г-200 кг	300 с	0,2-1	0,2-0,5	7.3

Продолжение таблицы 23.1

Форма или матрица материала	Методика НРА	Измеряемые изотопы	Пассивная или активная	Диапазон	Время	Сходимость, %	Погрешность, %	Ссылка
<u>НОУ</u>								
Оксиды	Измеритель обогащения	^{235}U (%)	П	200 г-200 кг	300 с	0,2-1	0,2-0,5	7.3
	Нейтронные совпад. (AWCC)	Делящиеся	A	1-10 кг	1000 с	5	5-10	17.3
	Калифорниевый шафлер	Делящиеся	A	10 г-10 кг	1000 с	1	1-2	[4]
	Фотонейтронный (RHONID)	Делящиеся	A	10-1000 г	200 с	0,1-3	1-5	[6,7]
UF_6 газообразн.	Гамма с поправкой на пропускание	^{235}U	П	5-100 г	1000 с	0,7	1-3	7.5
	Измеритель обогащения	^{235}U (%)	П	200 г-20 кг	300 с	0,25-1	0,25-0,5	7.3
UF_6 твердый	Нейтронные совпад. (AWCC)	Делящиеся	A	1-10 кг	1000 с	1	2-5	[6]
	Измеритель обогащения	^{235}U (%)	П	200 г-500 кг	300 с	1	1-5	7.7
Растворы	Гамма с поправкой на пропускание	Конц. ^{235}U	П	1-400 г/л	1000 с	0,5	0,5	6.9
	Плотнометрия по К-краю	Конц. U	A	40-500 г/л	1500 с	0,5	0,2-1	9.4
	Плотнометрия по L_{II} -краю	Конц. U	A	5-100 г/л	1500 с	0,5	0,2-1	9.4
	Рентгенофлуоресценция	Конц. U	A	0,1-400 г/л	300 с	0,5	0,3-1	10.5

Продолжение таблицы 23.1

Форма или матрица материала	Методика НРА	Измеряемые изотопы	Пассивная или активная	Диапазон	Время	Сходимость, %	Погрешность, %	Ссылка
<u>НОУ</u>								
Топливные таблетки	Нейтронные совпад. (AWCC)	Делящиеся	A	1-10 кг	1000 с	5	5-10	17.3
	Калифорниевый шаффлер	Делящиеся	A	1 г-10 кг	1000 с	1	1-2	[4]
	Фотонейтронный (RHONID)	Делящиеся	A	10-1000 г	200 с	0,1-3	1-5	[6,7]
	Колодезный гамма-счетчик	²³⁵ U	П	1-10 г	300 с	0,1-3	0,1-0,5	7.3
	Измеритель обогащения	²³⁵ U (%)	П	200 г-20 кг	300 с	0,5-1	0,25-1	[2]
<u>ТВЭЛ</u>								
	Воротн.счетч.нейтрон.совпад.	²³⁵ U	A	100 г-10 кг	1000 с	1	2-4	17.3
	Воротн.счетч.нейтрон.совпад.	²³⁸ U	П	1-10 кг	1000 с	2	5	17.3
	Сканер ТВЭЛ	Делящиеся	A	1-100 г	30 с	0,1	1	[1]
<u>Скrap/отходы (высокой плотности)</u>								
	Калифорниевый шаффлер	Делящиеся	A	1 г-10 кг	1000 с	1	5-20	[4]
	Нейтронные совпад. (AWCC)	Делящиеся	A	1-10 кг	1000 с	5	10-50	17.3
	Гамма с поправкой на пропускание	²³⁸ U	П	100-5000 г	1000 с	1	2-20	6.9.3
	Общ.поток нейтр. (колод.счетч.)	²³⁸ U	П	10-500 кг	1000 с	1	2-5	15.4

Продолжение таблицы 23.1

Форма или матрица материала	Методика НРА	Измеряемые изотопы	Пассивная или активная	Диапазон	Время	Сходимость, %	Погрешность, %	Ссылка
<u>НОУ</u>								
Скrap/отходы (низкой плотности)	Сегментный гамма-сканер (SGS)	²³⁵ U	П	1-200 г	1000 с	1	2-10	6.9.5
	Гамма с поправкой на пропускание	²³⁵ U	П	5-200 г	1000 с	1	2-20	6.9.3
	Дифференциальное затухание	Делящиеся	А	5 мг-10 г	1000 с	1	30	[3]
<u>Смесь урана и плутония</u>								
Оксиды	Нейтронные совпад.(HILNCC)	Воспроизв.Рu	П	10-6000 г	300 с	0,5	1-2	17.2
	Калориметрия/масс-спектрометрия	Общий Рu	П	10-6000 г	4-8 ч	0,3	0,5	21.9
	Калориметрия/гамма-спектрометрия	Общий Рu	П	10-6000 г	4-8 ч	0,5	1-2	21.9
	Нейтронные совпад. (AWCC)	Делящ.Рu, U	А	50-2000 г	1000 с	3	5	17.3
	Гамма-спектрометрия	Весь без ²⁴² Рu	П	0,1-6000 г	1 ч	0,1-(3-5)	0,2-1	8.7
	Гамма-спектрометрия	Отношение Рu/U	П	0,1-6000 г	300 с	1	2	7.8

Продолжение таблицы 23.1

Форма или матрица материала	Методика НРА	Измеряемые изотопы	Пассивная или активная	Диапазон	Время	Сходимость, %	Погрешность, %	Ссылка
<u>Смесь урана и плутония</u>								
Растворы	Гамма с поправкой на пропускание	$^{239}\text{Pu}/^{235}\text{U}$	П	1-400 г/л	1000 с	0,5	0,2-1	6.9
	Плотнометрия по К-краю	Конц. Pu и U	A	40-500 г/л	1500 с	0,5	0,2-1	9.4
	Плотнометрия по L_{II} -краю	Конц. Pu и U	A	5-100 г/л	1500 с	0,5	0,2-1	9.4
	Рентгенофлуоресценция	Конц. Pu и U	A	0,1-400 г/л	300 с	0,5	U:0,3/Pu:2	10.5
Топливные таблетки	Нейтронные совпад.(HNLNCC)	Воспроизв. Pu	П	1-2000 г	300 с	0,5	1-2	17.2
	Калориметрия/масс-спектрометрия	Общий Pu	П	10-6000 г	8-16 ч	0,3	0,5	21.9
	Калориметрия/гамма-спектрометрия	Общий Pu	П	10-6000 г	8-16 ч	0,5	1-2	21.9
	Нейтронные совпад. (AWCC)	Деляц. Pu, U	A	50-2000 г	1000 с	3	5	17.3
	Гамма-спектрометрия	Весь без ^{242}Pu	П	0,1-6000 г	1 ч	0,1-(3-5)	0,2-1	8.7
	Гамма-спектрометрия	Отношение Pu/U	П	0,1-6000 г	300 с	1	2	7.8

Окончание таблицы 23.1

Форма или матрица материала	Методика НРА	Измеряемые изотопы	Пассивная или активная	Диапазон	Время	Сходимость, %	Погрешность, %	Ссылка
<u>Смесь урана и плутония</u>								
ТВЭЛ	Воротн.счегч.нейтрон.совпад.	Делящ.Рu, U	A	100 г-10 кг	1000 с	1	2-4	17.3
	Воротн.счегч.нейтрон. совпад.	Воспроизв. Рu	П	100-6000 г	1000 с	1	1-2	17.3
	Калориметрия/изотоп. состав	Общий Рu	П	10-200 г	1 ч	0,4	1-3	22.5
	Сканер ТВЭЛ	Делящ. Рu, U	A	1-100 г	30 с	0,1	1	[1]
Скрап/отходы (высокой плотности)	Нейтронные совпад. (HNLNCC)	Воспроизв. Рu	П	10-6000 г	300 с	1-5	5-30	17.2
	Калориметрия/масс-спектрометрия	Общий Рu	П	10-6000 г	8-16 ч	0,3	0,5	22.4
	Калориметрия/гамма-спектрометрия	Общий Рu	П	10-6000 г	8-16 ч	0,5	1-2	22.4
	Нейтронные совпад.(AWCC)	Делящ.Рu, U	A	50-2000 г	1000 с	5	10-50	17.3
Скрап/отходы (низкой плотности)	Сегментный гамма-сканер (SGS)	²³⁹ Pu	П	1-1400 г	1000 с	0,5-2	2-20	6.9.5
	Гамма-анализ с попр. прохожд.	²³⁹ Pu	П	1-1400 г	300 с	1	2-25	6.9.3
	Нейтронные совпад.(HNLNCC)	Воспроизв. Рu	П	10-6000 г	1000 с	5	5-30	17.2
	Дифференциальное затухание	Делящ. Рu, U	A	5 мг-10 г	1000 с	1	30	[3]

ЛИТЕРАТУРА

1. T.Gozani, *Active Nondestructive Assay of Nuclear Materials, Principles and Applications*, NUREG/CR-0602 (US Nuclear Regulatory Commission, Washington, DC, 1981).
2. *Handbook of Nuclear Safeguards Measurement Methods*, D.R.Rogers, Ed., Mound Laboratory report MLM-2855, NUREG/CR-2078 (US Nuclear Regulatory Commission, Washington, DC, 1983).
3. J.Caldwell et al., "Test and Evaluation of a High-Sensitivity Assay System for Bulk Transuranic Waste," *Nuclear Materials Management XII*, 75, (1984).
4. T.W.Crane, "Test and Evaluation Results of the ^{252}Cf Shuffler at the Savannah River Plant," Los Alamos National laboratory report LA-8755-MS (March 1981).
5. H.O.Menlove, N.Ensslin, and T.E.Sampson, "Experimental Comparison of the Active Well Coincidence Counter with the Random Driver," Los Alamos Scientific Laboratory report LA-7882-MS (June 1979).
6. R.Schenkel et al., "Calibration and Experimental Comparison of the Active Well Coincidence Counter and PHONID-II," Commission of the European Communities report EUR 10377 EN (1986).
7. R.Carchon et al., "Active Interrogation of Pu and U Bulk Samples with PHONID Devices," Proc. 7th ESARDA Symposium on Safeguards and Nuclear Material Management, Liege, Belgium, May 1985, p.153.
8. L.Cowder and H.Menlove, "Neutron Coincidence Counter for MOX Fuel Pins in Storage Trays: Users' Manual," Los Alamos National laboratory report LA-9493-M (August 1982).
9. H.O.Menlove, G.W.Eccleston, J.E.Swansen, P.Goris, R.Abedin-Zadeh, and A.Ramalho, "Universal Fast Breeder Reactor Subassembly Counter Manual," Los Alamos National laboratory report LA-10226-M (August 1984).

Предметный указатель

А

- Активность, удельная 3
- Альфа-излучение 2
 - альфа-частицы 4, 336
 - – длина пробега 4, 338
 - альфа-излучатели 4
 - взаимодействие с веществом 340
- Анализатор импульсов
 - двухканальный 49
 - многоканальный (МКА) 49, 63, 83, 445
 - одноканальный (ОКА) 63, 592, 445
- Аналого-цифровой преобразователь (АЦП) 83
 - ворота антисовпадений 135
 - диапазон преобразования 86
 - коэффициент преобразования 83
 - мертвое время 85, 130
 - нелинейность преобразования 85
 - – дифференциальная 85
 - – интегральная 85
 - последовательного приближения 85
 - постоянная времени 132
 - Уилкинсона 85, 131
- Атом
 - модель Бора 7
 - энергетические уровни (см. *Электрон*)
 - ядро (см. *Ядро*)
 - ионизация 8
 - энергия возбуждения 8
- Атомный номер Z 3

Б

- Барьер деления 332
- Бета-излучение 2
- Бета-распад 6
 - электронный распад β^- 6
 - позитронный распад β^+ 6
 - электронный захват 6

- Бета-частицы 6
 - длина пробега 4
- Блок (устройство) детектирования
 - полость для образца 509

В

- Вековое равновесие распада ядер 219
- Ветвление ядерной реакции
 - интенсивность 4
- Внутреннего стандарта метод 322
- Внутренняя конверсия 5
 - коэффициент 8
- Возраст материала образца 318
- Время измерения
 - живое 144
 - мертвое (см. *Мертвое время*)
 - разрешения электроники 383
- Выгорание ядерного материала 542
 - глубина выгорания 542
 - – определение по отношению активностей продуктов деления 552, 558
- плутония 219, 229

Г

- Гамма-излучение, взаимодействие с веществом 25
 - комптоновское рассеяние 31, 50, 312
 - коэффициент ослабления 25
 - – массовый μ 27, 35, 158, 267, 308
 - – линейный μ_c 25, 157
 - коэффициент поглощения
 - – линейный μ_r 198
 - коэффициент пропускания T 26, 57, 161, 268, 283
 - – интерполяция 183

- – экстраполяция 183
 - образование электрон-позитронных пар 34
 - ослабление, основной закон 25
 - прохождение через вещество
 - – длина пробега в веществе 4, 194
 - – средняя длина свободного пробега 17, 27, 310
 - реакции 22
 - фотоэффект 29, 50, 310
 - Гамма-излучение, детекторы 41
 - выбор 65
 - Гамма-излучение, источники образования
 - аннигиляция электрон-позитронной пары 35
 - деление ядер 332
 - комптоновское рассеяние 312
 - неупругое рассеяние нейтронов 23
 - радиационный захват нейтронов 22
 - радиоактивный распад ядер 3, 283
 - тормозное излучение 22
 - облученное ядерное топливо 18
 - Гамма-излучение, энергетический спектр 10
 - комптоновская долина 52
 - комптоновский край 52
 - комптоновского фона континуум 52
 - комптоновское распределение 63
 - методики анализа 95
 - – определение положения пика 101
 - – определение ширины пика 112
 - – подгонка пика 127, 247
 - – суммирование по рассматриваемой области 246
 - область избыточной энергии 52
 - пик полного поглощения (фотопик) 51, 63, 116, 118
 - пик обратного рассеяния 52, 312
 - пик утечки 30
 - подъем в области низких энергий 52
 - Гамма-спектрометрическая система (гамма-спектрометр), составные части 64
 - анализ данных 88
 - аналого-цифровой преобразователь (АЦП) (см. Аналого-цифровой преобразователь)
 - высоковольтный источник питания 66
 - градуировка энергетическая 95
 - детектор
 - (см. Гамма-излучение, детекторы)
 - дисплей 88
 - измеритель скорости счета 82
 - каркас (крейт) 66
 - постоянная времени 132
 - предусилитель 67
 - стабилизатор спектра 86
 - счетчик (пересчетное устройство) 81
 - – максимальная загрузка 82
 - таймер 81
 - ячейка для образца (кювета) 288-298, 325
 - Гамма-спектрометрия 63
 - высокого разрешения 284, 558
 - низкого разрешения 284
 - Гаусса кривая 102
 - хвост 102
 - Гаусса функция 101
 - линеаризованная 108, 118
 - парабализованная 108, 118
 - Геометрия измерения
 - ближняя 164, 322
 - дальняя 164, 318
 - Градуировка спектрометра
 - внутренняя 96
 - энергетическая 96
 - Градуировочная постоянная 156
 - Градуировочная характеристика 96
 - график 99
 - линейная 96, 100
 - нелинейная 96
 - функция 96
- ## Д
- Деление ядер
 - барьер деления 332
 - вынужденное деление 18, 329
 - – множественность нейтронов 331, 334
 - гамма-кванты деления 333
 - нейтроны деления 330
 - продукты (осколки) (см. Осколки деления)
 - спектр нейтронов деления 333
 - спонтанное деление 18, 329
 - – множественность нейтронов 331, 334

- – период полураспада 331
- Детектор излучения 41
 - активируемые фольги 405
 - термолюминесцентный дозиметр 405
 - энергетическое разрешение 53, 65, 70
 - эффективность регистрации излучения 56, 65, 162
 - – геометрическая 56
 - – образца 57
 - – относительная 57
 - – поглощения 56
 - – полная (абсолютная) 56
 - – собственная 57
 - – характеристика 99
- Детектор излучения газонаполненный 41, 378
 - время собирания заряда 384, 392
 - камера ионизационная 42, 380
 - – камера деления 394
 - рабочие области 380
 - – Гейгера-Мюллера 380
 - – ионизации 380
 - – пропорциональности 380
 - счетная характеристика 380
 - – плато 380, 388
 - – рабочее напряжение 388
 - счетчик газоразрядный 41
 - – Гейгера-Мюллера 42, 382
 - – пропорциональный 42, 387, 587
 - проточный 587
 - Детектор излучения полупроводниковый (твердотельный) 44-48, 58
 - германиевый, особо чистый (ОЧГ) 45
 - коаксиальный 45
 - колодезный 45
 - обедненная область 44
 - область собственной проводимости 45
 - планарный 45, 70
 - Детектор излучения сцинтилляционный 43-44, 397
 - время высвечивания 401
 - детектор Хорняка 405
 - дискриминация сигналов по форме импульсов 401
 - – приведенная чувствительность 401
 - жидкий 397, 502
 - неорганический 43
 - органический 43
 - – пластмассовый 397, 502, 586
 - световыход 400
 - стеклянный 404
 - чувствительный объем 43, 102
 - эффективность конверсионная 398
 - Дискриминатор импульсов амплитудный
 - верхнего уровня 86, 592
 - нижнего уровня 86, 592
 - Длина свободного пробега гамма-кванта 4, 17, 310
 - Длина свободного пробега нейтрона 364

З

 - Замедлитель детектора нейтронов
 - расчет конструкции 432-436
 - Защита от излучения
 - от гамма-излучения 38, 383
 - от нейтронов 372
 - от рентгеновского излучения 620

И

 - Излучения, радиоактивные 2
 - Измеритель скорости счета 82
 - Изотмер 5
 - Изотоп
 - воспроизводящий 332, 360, 540
 - делящийся 332, 360, 540
 - Изотопных отношений метод 239
 - Импульс детектора излучения
 - время нарастания 69, 401
 - время спада 69
 - наложения импульсов 73, 131
 - цепи режекции наложений 67
 - Ионизация 8, 41, 379
 - вторичная 380
 - коэффициент газового усиления 381
 - лавинная 380
 - образование пары ион-электрон 49, 54
 - Источник излучения
 - градуировочный (эталонный) 592
 - образцовый (реперный) 143, 187
 - Источники нейтронов радиоизотопные 345
 - америций-бериллиевый AmBe, спектр 342

- америций-литиевый AmLi 479, 525
- – спектр 342
- калифорниевый ^{252}Cf 394, 479
- – спектр 333, 335
- Источники рентгеновского излучения 306
- возбужденное ядро 8, 306
- радиоизотопный 322
- рентгеновский генератор 322

К

- Калориметры 638
- градуировка 651
- основные составные части 655
- – градуировочные источники теплоты 656
- – камера для образца 640
- – камера эталонная 640
- – корпус теплоизолирующий 638
- – мост Уитстона 640
- – пульт управления и обработки данных 656
- – сервоконтроллер 647
- принцип действия 638
- – адиабатический 639
- – изотермический 639
- – теплового потока 639
- метод работы 648, 649
- чувствительность 640
- Коллимация гамма-излучения 38, 245, 273
- Конверсия внутренняя 5
- Корреляция изотопная, ^{242}Pu 243
- Коэффициент
- внутренней конверсии 5
- газового усиления 381
- замедления 369
- ослабления
- (см. *Гамма-излучение, взаимодействие с веществом*)
- поглощения 198
- поправки (см. *Поправка*)
- преобразования АЦП 83
- пропускания гамма-излучения 26, 57, 161, 268, 283, 320
- размножения 370, 426
- усиления 67, 71
- утечки нейтронов 443

- Край кривой поглощения фотонов 272, 308
- К-край 273
- L-край 273

М

- Массовое число A 3
- Мертвое время 130
- аналого-цифрового преобразователя 85, 130-131
- непродлеваемое (непарализуемое) 131, 469
- продлеваемое (парализуемое) 131, 469
- переменное 471
- электроники 392, 468, 473
- Множественность нейтронов 333, 486
- Монитор радиационный 575
- градуировка 592
- диагностика 591
- испытания 593
- назначение и область применения 576, 594
- порог обнаружения ядерного материала 582
- радиационный фон 577
- Монитор радиационный, конструкция 588
- портативный 576
- ручной (носимый) 594
- составные части 588
- – детекторы 586
- – источники питания 591
- – электронные блоки 589
- стационарный 576
- – пешеходный 596
- – транспортный 596
- Мониторинг радиационный, обработка результатов измерений 582
- регистрация сигналов детектора 582
- – аналоговая 583
- – долговременная 585
- – цифровая 583
- методика последовательной проверки гипотез 585
- методика последовательных шагов 584
- методика скользящего среднего 584

Н

Нелинейность

- градуировочной характеристики
- дифференциальная 85
- интегральная 85

Неопределенность измерения

- критерий “трех сигм” 279

Нейтронные совпадения 463

- действительные 466
- множественность совпадений 429
 - поправка на эффект размножения 429
- распределение 466
 - интервалов 466
 - Росси-альфа 467
- случайные 466

Нейтронные детекторы 377

- быстрых нейтронов 393
 - на ядрах отдачи 393, 395, 502
- всеволновой (“длинный”) 406, 458
- нейтронных совпадений 501
 - активные 525
 - пассивные 503
- полного потока 409
- тепловых нейтронов 387
- чувствительность 383
 - к быстрым нейтронам 386
 - к гамма-излучению 383, 386, 393, 397
 - к тепловым нейтронам 386

Нейтронные детекторы, обработка сигналов

- биполярный формирователь сигнала 402
- время нарастания импульса 394
- порог дискриминации 394, 396
- постоянная времени формирования сигнала 388, 398

Нейтронное образование

- вынужденное деление ядер 332, 410
- множественность 331
- неупругое рассеяние нейтронов (n, n') 344
- радиоизотопные источники (см. *Источники нейтронов радиоизотопные*)
- спонтанное деление ядер 332
 - запаздывающие 330
 - мгновенные 332
 - связанные во времени 501

- фотонейтронные реакции (γ, n) 344

- ($n, 2n$)-реакции 344

- (α, n)-реакции 336

Нейтронные спектрометры 406

- на гелии-3 (спектрометр Шалева) 407

- на протонах отдачи 407

- по времени пролета 407

Нейтроны 329, 353

- время жизни в детекторе (затухание) τ 466, 501
- масса покоя 354
- тепловые 355
- термализация 356, 436, 466
- утечки 370
 - спектр 429
- число нейтронов в ядре N 3, 354

Нейтроны, взаимодействие

- с веществом 353
- длина свободного пробега (см. *Длина свободного пробега нейтрона*)
- замедление 368
 - замедляющая способность материала 368
 - коэффициент замедления 369
 - логарифмический декремент 368
- рассеяние 355
 - неупругое (n, n') 356
 - упругое (n, n) 356, 393
- реакции поглощения (захвата) 357
 - деление ядер (n, f)
 - радиационный захват (n, γ)
 - умножение нейтронов ($n, 2n$), ($n, 3n$) и т.п. 369
 - рождение заряженных частиц (n, p), (n, d), (n, α) и т.п. 387

Нейтроны подсветки, источник 410, 525

Нейтроны, размножение 369, 412

- коэффициент размножения k 370, 426
 - эффективный коэффициент размножения $k_{эфф}$ 370
- прибыль нейтронов 426
- умножение нейтронов M 370, 426
- умножение нейтронов утечки M_L 410, 426

Нейтроны, расчет переноса 374

- метод дискретных ординат 375
- метод Монте-Карло 375, 428

Нейтроны, сечение взаимодействия 353

- макроскопическое 361

- микроскопическое 354
- полное сечение взаимодействия 355
- полное сечение рассеяния 358
- – сечение неупругого рассеяния 358
- – сечение упругого рассеяния 358, 393
- резонансные пики сечения 358
- сечение поглощения (захвата) 358
- – сечение реакции деления ядра 358
- – сечение неупругого взаимодействия 358
- – сечение радиационного захвата 358

О

- Область анализа, рассматриваемая 89, 95, 119
- Облученное ядерное топливо 18, 539
 - время охлаждения (выдержки) 544
 - выход нейтронов 554, 563
 - интенсивность гамма-излучения 549
 - черенковское излучение (см. *Черенковское излучение*)
- Образец
 - анализируемый (исследуемый) 157
 - без размножения нейтронов 494
 - “бесконечной” толщины критерий 194
 - небесконечный 203-205
 - однородность 157
 - равномерность 157
 - с высоким размножением нейтронов 473, 494
 - стандартный 156, 271, 322, 444, 494
 - – растворителя 271
 - типовые формы 163
 - толстый 362, 425
 - тонкий 425
 - эффективность 57
 - эффект матрицы 199
- Осколки деления 18, 329, 395, 542
 - выход гамма-излучения 542
 - распределение по массе 543
 - средняя длина пробега 395
- Ослабление излучения в материале (см. *Вид излучения, взаимодействие с веществом*)
- Отложения ядерных материалов 610
 - моделирование 612
 - процедуры измерения 620
 - типичные величины для оборудования 612
- Отношение изотопное 219, 239

- Отходы ядерных материалов
 - сортировка 604
 - методические пределы обнаружения 605

П

- Пик распределения импульсов
 - вычитание комптоновского фона 119-124
 - наложение пиков 131
 - определение площади 124
 - определение положения 101
 - определение ширины 112
 - параметр формы 245
 - полная ширина пика
 - – на половине высоты 53, 112
 - – на части высоты 117
 - реперный 248
 - центроида 51, 101-102
- Плотномеры 283
 - двухэнергетические 284
 - источники излучения пропускания 285
 - – дискретного гамма-излучения 285
 - – непрерывного тормозного излучения 285
 - – рентгеновские генераторы 285
 - моноэнергетические 283
 - по краю поглощения 285
 - – по К-краю 286
 - – по L_{III}-краю 294
 - чувствительность 279
 - ячейка (ампула, кювета) для образца 287-298
 - – проточная 298
- Плотнометрия 267
 - двухэнергетическая 271
 - моноэнергетическая 268
 - многоэнергетическая 271
 - по краю поглощения 272
 - – источники 283
 - – эффект матрицы 280
- Плутоний
 - возраст образца 218
 - выгорание 219, 229
 - – высокое 219, 229
 - – низкое 96, 219, 221, 229, 463
 - – среднее 221
 - из регенерированного топлива 219

- изотопная корреляция 243
- изотопное отношение 239
- свежевыделенный 219
- старый 219
- характеристики распада изотопов 217
- эффективная масса изотопа ^{240}Pu 463
- Погрешность 177
 - абсолютная 177
 - относительная 177
- Поправка
 - на время после извлечения топлива из реактора 244
 - на длину ТВЭЛ, ТВС 670
 - на излучения на стенках контейнера 207
 - на мертвое время сдвигового регистра 471
 - на ослабление в образце 155, 317
 - на ослабление в стенке контейнера 200, 208
 - на ослабление в стенке оборудования 626
 - на отложение урана на стенке контейнера 207
 - на положение ТВЭЛ, ТВС в камере 670
 - на потери в электронике (на просчеты) 156, 318
 - на потери от мертвого времени 205, 473, 508
 - на пропускание (ослабление в образце) 205, 317
 - на разницу в матрицах образцов 211
 - на самопоглощение в образце 57, 243
 - на самопоглощение в отложении 626
 - на саморазмножение в образце 489, 494
 - на состав образца 199
 - на содержание примесей 494
 - на содержание ^{242}Pu 251
 - на умножение от нейтронов (α, n)-реакции 490
 - на умножение от нейтронов спонтанного деления 490
- Порог обнаружения ядерного материала 277, 582
- Постоянная времени 132
- Предусилитель гамма-спектрометра 67
 - импульсно-оптический 70
 - максимальная загрузка 69

- максимальная скорость счета 69
- транзисторный 71
- Пропускная способность АЦП 132-133
 - кривая 136

Р

- Равновесие, вековое 219
- Разрешение
 - амплитудное
 - временное 139
 - энергетическое 53
- Радиоактивность естественная 20
- Распад, радиоактивный (ядерный) 3
 - альфа-распад 4
 - бета-распад 6
 - дочернее ядро 4
 - материнское ядро 4
 - период полураспада $T_{1/2}$ 3, 239
 - постоянная распада λ 3, 99, 203, 239
 - скорость R (удельная активность) 3
 - энергия распада 632
- Реакция ядерная
 - интенсивность ветвления 4
 - кулоновский барьер 338
 - мишень толстая 340
 - энергия реакции пороговая 338
 - энергия реакции Q 4, 338
- Рентгеновская флюоресценция 267
 - выход флюоресценции W 8
- Рентгеновское излучение 2, 306
 - источники 8, 306, 317
 - – рентгеновский генератор 282, 285, 298, 313, 322
 - – тормозное излучение 285, 317
 - – характеристическое излучение атома 9, 306
- Рентгенофлюоресцентный анализ (РФА) 293, 305
 - дисперсионно-волновой 306
 - дисперсионно-энергетический 306
 - источник возбуждения 312, 317

С

- Самопоглощение излучения 155
- Сигнал обнаружения 582
 - приращение 583

Системы регистрации нейтронов, конструкция
 – блок замедлителя 445
 – защита 440
 – соединительная коробка 445
 Системы регистрации нейтронов, основные составные части
 – детектор нейтронов 377
 – интегральный дискриминатор
 – источник нейтронов подсветки 410, 525
 – – генератор нейтронов 567
 – – радиоизотопный источник 525, 567
 – – ускоритель 567
 – предусилитель 445
 – сдвиговый регистр
 – схема совпадений 410
 – – автокорреляционный способ 470
 – – взаимокорреляционный способ 470
 – счетчик (пересчетное устройство) 445
 – таймер
 – усилитель 445
 Содержание изотопное
 – плутония 239
 – урана 193
 – – атомарное 193
 – – весовое 193
 Спектр энергетический
 (см. Гамма-излучение, энергетический спектр)

Т

Тепловыделение 632
 – удельная тепловая мощность P 251, 634
 – – эффективная удельная мощность $P_{эфф}$ 636, 656
 Тепловыделяющая сборка (ТВС)
 – свежая 548
 – облученная 548
 – – атрибутивные признаки 548
 – – черенковское излучение 548, 560
 Топливо ядерное (ЯТ), контроль
 – для быстрых критических стенов 512
 – для легководных реакторов 193, 503, 532
 – – на кипящей воде 531, 541
 – – с водой под давлением 531, 541

– для материаловедческих реакторов 193, 503
 – для реакторов типа CANDU 193
 – для реакторов-размножителей 514, 532, 541
 – облученное
 (см. Облученное ядерное топливо) 18, 539
 – отработавшее (ОЯТ)
 – – продукты переработки 323
 – регенерированное 219
 Торий, излучение руды 20

У

Уран
 – излучение руды 22
 – обогащение 193
 – – атомарное содержание 193
 – – весовое содержание 193
 – природного обогащения 96
 Усилитель спектрометрический 67, 71
 – базовый уровень напряжения 72, 75
 – – восстановление 75
 – выходной импульс 95
 – интегратор 72, 78
 – коэффициент усиления 67, 71
 – линия задержки 73
 – отношение сигнал/шум 72
 – режектор наложений 67, 76, 134
 – схема “полюс-ноль” 74
 – электронное дифференцирование 72

Ф

Фактор Фано 54
 Фильтры гамма-излучения 36, 245
 Флюоресценция рентгеновская 8, 267
 – выход ω 8, 307
 Фон радиационный 20
 – вычитание фона из спектра 119-124
 – неопределенность результата измерения 279
 – космический 20
 Фотоумножитель (ФЭУ) 43
 – коэффициент усиления 44

Х

Характеристика

- градуировочная 528
- чувствительности 509

Ц

Центроида пика 51, 101, 247

Ч

Черенковское излучение 548

- измерение 560

Э

Электрон

- аннигиляция 35
- внутренняя конверсия 5
- Оже-электрон 5, 306
- энергетические уровни в атоме 7
- энергия связи в атоме В 8, 306

Энергетическое разрешение

(см. *Разрешение энергетическое*)

Энергия возбуждения (см. *Атом*)

Энергия реакции пороговая 338

Энергия реакции Q 4, 338

Энергия связи, (см. *Электрон*)

Энергия тепловая ядерного распада 632

Эталонный раствор для плотнометрии
284, 298

Эффективность детектора

- геометрическая, 56
- график (кривая) 57, 99, 241
- образца, 57
- относительная 57, 65, 151, 241
- относительно NaI 57, 152
- поглощения, 56
- полная (абсолютная) 56, 146, 586
- собственная 57, 147, 586

Я

Ядерный материал

- атрибутивные признаки 602
- балк-форма 503
- отложения 444, 447
- отходы 451
- учетная единица (инвентарные образцы) 503, 516, 609

Ядро атома

- возбужденное состояние 5
- внутренняя конверсия 5
- изомеры 5
- распад 4
- – дочернее 4
- – материнское 4