

**МЕТОДЫ И ПРИБОРЫ  
ДЛЯ ИЗМЕРЕНИЯ ЯДЕРНЫХ И ДРУГИХ  
РАДИОАКТИВНЫХ МАТЕРИАЛОВ**

Образовательная программа  
в области физической ядерной безопасности

учебное пособие

под общей редакцией  
Бойко В.И., Силаева М.Е.

УДК 539.17; 621.039

**Рецензенты:** Кирияченко В.А. (теоретический раздел); Гущин К.Ю. (теоретический и практический разделы).

Пособие издано за счет средств и в рамках выполнения проекта МНТЦ «Ответственная наука» в 2011 г.

Образовательная программа в области физической ядерной безопасности. Учебное пособие по курсу «**Методы и приборы для измерения ядерных и других радиоактивных материалов**».

Под общей редакцией **Бойко В.И., Силаева М.Е.**

Авторы: Бойко В.И., Жерин И.И., Каратаев В.Д., Недбайло Ю.В., Силаев М.Е.

Разработано на основе Практического руководства МАГАТЭ для образовательной программы подготовки магистров в области физической ядерной безопасности (IAEA Nuclear Security Series No12 “Educational Programme in Nuclear Security”). Содержит названия и нумерацию разделов, соответствующие Практическому руководству.

Приведены основы прикладной статистики для в ядерно-физических измерениях. Описаны принципы работы и конструкция радиационных детекторов (газонаполненных, сцинтилляционных, полупроводниковых). Сделан краткий обзор методов измерения нейтронного излучения и заряженных частиц. Рассмотрены особенности гамма-спектрометрического анализа; активационного анализа. Представлены основы разрушающих методов анализа ядерных и радиоактивных материалов. Кратко описаны некоторые методы количественных измерений.

Содержит практическое и лабораторные занятия по курсу.

Для студентов и специалистов в области физической защиты, учета и контроля ядерных материалов, а также физической ядерной безопасности.

## IAEA PREFACE

The possibility that nuclear or other radioactive material could be used for criminal or unauthorized purposes cannot be ruled out in the current global situation. The IAEA cooperate with and assist States' efforts to build, develop and sustain nuclear security. In order to advance sustainable nuclear security the IAEA developed, inter alia, a comprehensive overall strategy in a human resource development. The strategy includes the development/establishment of and implementation of a comprehensive human resource development programme including training courses and recommendations for Certificate and Master of Science Programs.

The IAEA Technical Guidance "Educational Programme in Nuclear Security" (IAEA Nuclear security Series No.12) was issued in 2010 as a result of longstanding work of experts from different states under development of Certificate and Master of Science Programs in Nuclear Security. The Guidance is intended for use by universities and other academic institutions. It contains a detailed description of 22 recommended courses divided on three groups such as prerequisites, required and elective courses as well as proposed schedule for their implementation.

The International Nuclear Security Education Network (INSEN), part of the IAEA human resource development strategy, was established by IAEA for developing, sharing and promoting excellence in nuclear security education. INSEN activities include the development of training materials for the implementation of NSS 12.

The textbook "NS4.Methods and instruments for nuclear and other radioactive material measurements" was developed by a group of professors and instructors from Tomsk Polytechnic University (TPU), a member of INSEN. The content of the textbook complies entirely with the objectives and requirements of the Technical Guidance. The course belongs to the list of those required for the MSc programme. Examples of a practical exercise as well as three laboratory work exercise were incorporated into the course.

The textbook, the practical exercises and laboratory work exercises were reviewed by experts from Sevastopol National University of Nuclear Energy and Industry in 2010. Necessary and appropriate changes in the textbook were made during 2010-2011.

The textbook provides an extensive volume of information for the implementation of the training course for use in educational programs in nuclear security at universities and other educational institutions.



Khammar Mrabit  
Director Office of Nuclear Security  
Department of Nuclear Safety and Security  
International Atomic Energy Agency

#### **А. Наименование курса**

**NS4 Методы и приборы для измерения ядерных и других радиоактивных материалов**

#### **В. Цели курса**

По завершении данного курса студенты смогут разбираться в различных методах и техническом оснащении для измерения ядерных и других радиоактивных материалов, а также идентифицировать и выбирать соответствующие методы измерения, детекторы и оборудование.

#### **С. Краткое описание**

Курс ориентирован на различные детекторы и приборы для измерения ионизирующего излучения, их практическое использование и значение в национальной системе физической ядерной безопасности. Курс содержит детальное описание физических принципов действия наиболее известных детекторов  $\alpha$ ,  $\beta$ ,  $\gamma$  и нейтронного излучения, а также актуальных методик детектирования ядерных и других радиоактивных материалов. Специальное внимание будет уделено практическому использованию теоретических знаний.

#### **Д. Основные модули**

##### **NS4.1 Прикладная статистика в измерениях**

- Точность и правильность
- Смещенные (систематические) и случайные погрешности
- Уровни детектирования

##### **NS4.2 Детекторы ионизирующего излучения**

- Ионизационные камеры
- Пропорциональные счетчики
- Счетчики Гейгера-Мюллера
- Сцинтилляционные детекторы
- Полупроводниковые детекторы

##### **NS4.3 Детектирование нейтронов**

- Взаимодействие нейтронов с веществом, замедление нейтронов
- Нейтронные детекторы
- Мгновенные и запаздывающие нейтроны
- Методы детектирования
- Нейтронные источники, импульсные нейтронные источники

##### **NS4.4 Детектирование заряженных частиц**

- Детектирование электронов
- Детектирование альфа-частиц, спектрометрия альфа излучения

##### **NS4.5 Гамма спектрометрия**

- Калибровка по энергии и эффективности, измерения
- Идентификация изотопов
- Определение изотопного состава

##### **NS4.6 Активационный анализ**

- Выбор ядерных реакций и времени облучения
- Чувствительность активационного анализа

##### **NS4.7 Разрушающий анализ**

- Радиохимические методы
- Масс спектрометрия
- Анализ частиц

**NS4.8 Количественные измерения ядерных материалов (с использованием системы совпадений, калориметрии, разрушающего анализа, гамма-спектрометрии и т.д.).**

#### **Е. Практические занятия по курсу NS4**

NS4.2 Демонстрация радиационных детекторов и практические упражнения с ними.

#### **Ф. Лабораторные работы**

NS4.3-NS4.4 Измерения альфа, бета, гамма и нейтронных источников.

NS4.5 Энергетическая калибровка NaI и Ge детекторов. Идентификация неизвестных радиационных источников.

NS4.6 Измерение обогащения  $^{235}\text{U}$  и количества урана в образце.



## ОГЛАВЛЕНИЕ

Список обозначений .....	7
Предисловие .....	8
<b>NS4.1 Прикладная статистика в измерениях .....</b>	<b>9</b>
NS4.1.1 Точность и правильность .....	9
NS4.1.2 Смещенные (систематические) и случайные погрешности .....	17
NS4.1.3 Уровни детектирования .....	24
<b>NS4.2 Детекторы ионизирующих излучений .....</b>	<b>32</b>
NS4.2.1 Ионизационные камеры .....	32
NS4.2.2 Пропорциональные счетчики .....	38
NS4.2.3 Счетчики Гейгера-Мюллера .....	41
NS4.2.4 Сцинтилляционные детекторы .....	44
NS4.2.5 Полупроводниковые детекторы .....	56
<b>NS4.3 Детектирование нейтронов .....</b>	<b>73</b>
NS4.3.1 Взаимодействие нейтронов с веществом, замедление нейтронов .....	73
NS4.3.2 Нейтронные детекторы .....	78
NS4.3.3 Мгновенные и запаздывающие нейтроны .....	94
NS4.3.4 Методы детектирования .....	101
NS4.3.5. Нейтронные источники, импульсные нейтронные источники .....	122
<b>NS4.4 Детектирование заряженных частиц .....</b>	<b>137</b>
NS4.4.1 Детектирование электронов .....	141
NS4.4.2 Детектирование альфа – частиц, спектрометрия альфа – излучения .....	144
<b>NS4.5 Гамма-спектрометрический анализ .....</b>	<b>151</b>
NS4.5.1 Калибровка по энергии и эффективности, измерения .....	151
NS4.5.2 Идентификация изотопов .....	161
NS4.5.3 Определение изотопного состава .....	169
<b>NS4.6 Активационный анализ .....</b>	<b>190</b>
NS4.6.1 Выбор ядерных реакций и времени облучения .....	190
NS4.6.2 Чувствительность активационного анализа .....	197
<b>NS4.7 Разрушающий анализ .....</b>	<b>208</b>
4.7.1 Радиохимические методы .....	211
4.7.2 Масс спектрометрия .....	230
4.7.3 Анализ частиц .....	239
<b>NS4.8 Количественные измерения ядерных материалов .....</b>	<b>245</b>
4.8.1 Регистрация нейтронных совпадений .....	245
4.8.2 Калориметрия ядерных материалов .....	255
4.8.3 Плотнометрия .....	270
<b>Литература .....</b>	<b>284</b>
<b>Практические и лабораторные занятия по курсу NS4 «Методы и приборы для измерения ядерных и других радиоактивных материалов» .....</b>	<b>291</b>
<b>Е. NS4.2 ДЕМОНСТРАЦИЯ РАДИАЦИОННЫХ ДЕТЕКТОРОВ И ПРАКТИЧЕСКИЕ УПРАЖНЕНИЯ С НИМИ .....</b>	<b>293</b>
<b>Ф. Лабораторные работы .....</b>	<b>299</b>
<b>NS4.3-NS4.4 Измерения альфа, бета, гамма и нейтронных источников .....</b>	<b>299</b>
Часть 1. NS4.3.1. Измерение альфа-источников .....	300
Часть 2. NS4.3.2. Измерение бета-источников .....	307
Часть 3. NS4.3.3. Измерение гамма-источников .....	315
Часть 4. NS4.3.4. Измерение нейтронов .....	322
<b>NS4.5 Энергетическая калибровка NaI и Ge детекторов. Идентификация неизвестных радиационных источников .....</b>	<b>327</b>
Часть 1. NS4.5.1. Проведение калибровки по энергии и идентификации радионуклидного состава источника излучения с помощью гамма-спектрометрического тракта со сцинтилляционным детектором .....	330

<i>Часть 2. NS4.5.2. Проведение калибровки по энергии и идентификации радионуклидного состава источника излучения с помощью гамма-спектрометрического тракта с полупроводниковым детектором</i> .....	333
<b>NS4.6 Измерение обогащения <sup>235</sup>U и количества урана в образце</b> .....	<b>338</b>
<i>Часть 1. NS4.6.1. Определение обогащения урана с помощью сцинтилляционного гамма-спектрометра</i> .....	340
<i>Часть 2. NS4.6.2. Определение обогащения урана с помощью полупроводникового детектора высокого разрешения</i> .....	344
<i>Часть 3. NS4.6.3. Определение обогащения урана с помощью метода изотопных отношений (относительной эффективности)</i> .....	346

## СПИСОК ОБОЗНАЧЕНИЙ

СКО – среднеквадратическое отклонение;  
МДА – минимальная детектируемая активность;  
ФЭУ – фотоэлектронный умножитель;  
ППД – полупроводниковый детектор;  
АЦП – аналого-цифровой преобразователь;  
НОУ – низкообогащённый уран;  
ВОУ – высокообогащённый уран;  
НРА – неразрушающий анализ;  
ЯМ – ядерный материал;  
ИИ – ионизирующее излучение;  
ИИН – импульсные источники нейтронов;  
ИРПД – импульсные реакторы периодического действия;  
ИРСД – импульсные реакторы самогасящего действия;  
ИБР – импульсный быстрый реактор;  
МКА – многоканальный анализатор;  
ОКА – одноканальный анализатор;  
ПШПВ – полная ширина на половине высоты;  
РМ – радиоактивный материал;  
МА – методы анализа;  
АА – активационный анализ;  
НАА – нейтронный активационный анализ;  
АЭС – атомно-эмиссионная спектроскопия;  
ААС – атомно-абсорбционная спектроскопия;  
АФС – атомно-флуоресцентная спектроскопия;  
АИС – атомно-ионизационная спектроскопия;  
МС – масс-спектрометрия;  
УФО – ультрафиолетовая область;  
ИКО – инфракрасная область;  
РСА – рентгеноспектральный анализ;  
РРА – рентгенорадиометрический анализ;  
РФА – рентгенофлуоресцентный анализ;  
АЭСА – атомно-эмиссионный спектральный анализ;  
ИСП – индуктивно-связанная плазма;  
ПТ – потенциометрическое титрование;  
КПТ – кулонометрия с постоянным током;  
ККП – кулонометрия с контролируемым потенциалом.

## **NS4 МЕТОДЫ И ПРИБОРЫ ДЛЯ ИЗМЕРЕНИЯ ЯДЕРНЫХ И ДРУГИХ РАДИОАКТИВНЫХ МАТЕРИАЛОВ**

### **ПРЕДИСЛОВИЕ**

Методы и приборы измерения ядерных и радиоактивных материалов (ЯМ и РМ) являются самостоятельной научно-практической областью, на достижениях которой основываются успехи в других сферах научной и производственной деятельности. В частности, в значительной мере режим обеспечения гарантий нераспространения ядерных и радиоактивных материалов обеспечивается с помощью измерений и анализов их ионизирующего излучения. С точки зрения физической ядерной безопасности приборы и методы измерения ЯМ и РМ обеспечивают возможность своевременного их обнаружения и контроля, а также являются основным инструментом ядерных криминалистических расследований. Они используются в качестве элементов систем физической защиты службами безопасности ядерных и радиационно-опасных объектов, а также для контроля за перемещением грузов в транспортных коридорах аэропортов, на пунктах досмотра автомобильного, железнодорожного и других видов транспорта. Следовательно, методы измерения ЯМ и РМ являются элементом системы экспортного контроля и противодействия незаконному обороту материалов. Таким образом, достижения в разработке современных методов и техники анализов являются одним из гарантов системы нераспространения и защиты от противоправных действий как внутри государств, так и на международном уровне.

Учебное пособие по курсу «Методы и приборы для измерения ядерных и других радиоактивных материалов» предназначено для решения несколько задач, связанных с обучением и подготовкой специалистов по направлению «физическая ядерная безопасность»:

- изучение научных (физических, химических и других) основ методов измерения ионизирующего излучения;
- изучение базовых, современных технических возможностей измерения ядерных и радиоактивных материалов;
- изучение основных методов анализов;
- краткое изучение вопросов контроля качества измерений и анализов.

Нужно отметить, что каждая из перечисленных задач обучения достойна для выделения ее в отдельный курс, а объем материалов, которые могут быть использованы для подготовки специалистов, обширен и разнообразен. Поэтому при разработке материалов учебного пособия авторы были вынуждены определить для себя и придерживаться ряда ограничивающих его содержание и объем принципов:

- точное следование указаниям МАГАТЭ, изложенным в документе IAEA Nuclear Security Series No.12. Данный документ является результатом многолетней работы группы международных экспертов и после процедуры многократного обсуждения на технических совещаниях групп специалистов был утвержден и издан Агентством;
- подбор материалов пособия, обеспечивающий обучающихся необходимыми базовыми знаниями, а также информацией, имеющей максимальное прикладное значение;
- изложение теоретического материала доступным языком для аудитории, специальная подготовка которой в ядерной области минимальна и в лучшем случае ограничивается курсами, предваряющими обучение по направлению «физическая ядерная безопасность» (NS.PR1 Прикладная статистика; NS.PR2 Основы ядерной физики);
- сохранение объема изложения материала в рамках курса, предполагающего 48 часов лекционных занятий.

Курс охватывает следующие темы – прикладную статистику, детекторы ионизирующего излучения, детектирование нейтронов, детекторы заряженных частиц, гамма спектрометрию, активационный анализ, разрушающий радиохимический анализ и количественные измерения ЯМ.

## NS4.1 ПРИКЛАДНАЯ СТАТИСТИКА В ИЗМЕРЕНИЯХ

Основы и различные прикладные аспекты статистической обработки результатов измерений подробно описываются в курсе NS.PR1, изучение которого необходимо для понимания содержания данного раздела. В разделе сделан акцент и приведены примеры прикладного использования методов математической статистики для обработки результатов измерений.

Согласно заданному формату курса, рассматриваются некоторые существенные вопросы, связанные с тремя наиболее важными аспектами обработки результатов анализов: точность и правильность измерений; смещенные и случайные погрешности; уровни детектирования. Различными авторами предлагаются разнообразные подходы для обсуждения перечисленных аспектов. Все подходы имеют равное право на использование и, так или иначе, приводят к удовлетворительному результату. Авторами данного раздела за основу изложения выбраны принятые в международной практике подходы, используемые в международной системе качества ISO.

Под качеством измерения понимают такое его свойство, которое характеризует степень доверия к результатам измерения, то есть их достоверность.

Качество измерения описывается совокупностью метрологических характеристик, которые устанавливаются в специальных метрологических исследованиях и которые имеют количественное выражение.

В самом общем виде метрологические характеристики количественно описывают погрешности, которыми неизбежно сопровождается любое измерение и которые объективно обусловлены характером измеряемых величин, методом измерений, свойствами средств измерений и измерительными процедурами.

### *NS4.1.1 Точность и правильность*

Обязательной составной частью контроля качества измерений является контроль точности, который производится посредством сопоставления действительных значений параметров или характеристик точности с установленным. При этом точность определяется, как степень близости результатов к принятому опорному значению<sup>1</sup>.

Контролю точности подлежат, как результаты измерений, так и методы, с помощью которых эти результаты были получены.

Для описания точности метода измерений используют два термина: «правильность» (достоверность) и «прецизионность» (точность). Термин «правильность» характеризует степень близости среднего арифметического значения большого числа результатов измерений к истинному или принятому опорному значению, термин «прецизионность» – степень близости результатов измерений друг к другу. Рис. 4.1.1 дает наглядное объяснение используемых терминов на примере результатов стрельбы по мишеням.

Необходимость рассмотрения «прецизионности» возникает из-за того, что измерения, выполняемые на предположительно идентичных материалах при предположительно идентичных обстоятельствах, не дают, как правило, идентичных результатов. Это объясняется неизбежными случайными погрешностями, присущими каждой измерительной процедуре, а факторы, оказывающие влияние на результат измерения, не поддаются полному контролю. При практической интерпретации результатов измерений эта изменчивость должна учитываться. Например, анализ результатов испытаний двух существенно различающихся партий материала не выявит какого-либо существенного отличия в качестве, если расхождение между результатами лежит в области неизбежных случайных погрешностей.

На изменчивость результатов измерений, выполненных по одному методу, помимо различий между предположительно идентичными образцами, могут влиять многие различные

---

<sup>1</sup> Истинное значение измеряемой величины не может быть известно точно, поэтому при проведении измерений и анализе располагают принятым опорным значением. Опорное значение считается известным при наличии соответствующих стандартных образцов, или когда оно может быть установлено посредством ссылки на другой метод измерений, или путем приготовления известного образца.

факторы, в том числе: оператор, используемое оборудование, калибровка оборудования, параметры окружающей среды (температура, влажность, загрязнение воздуха и так далее), интервал между измерениями.

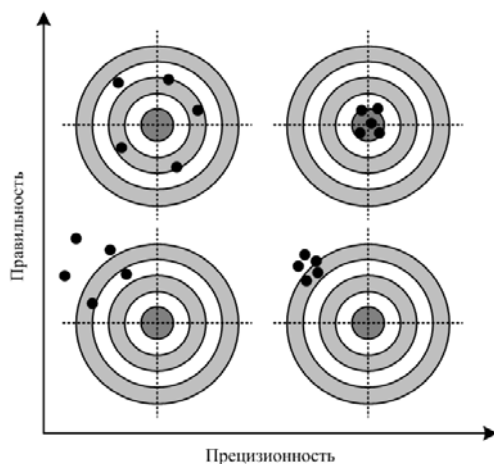


Рис. 4.1.1. Наглядное представление понятий правильности и прецизионности

Различия между результатами измерений, выполняемыми разными операторами и/или с использованием различного оборудования, как правило, будут больше, чем между результатами измерений, выполняемыми в течение короткого интервала времени одним оператором, с использованием одного и того же оборудования.

Прецизионность является общим термином для выражения изменчивости повторяющихся измерений. Существует два условия прецизионности, называемые условиями повторяемости<sup>2</sup> и воспроизводимости<sup>3</sup>, которые были признаны необходимыми и, во многих практических случаях, полезными для представления изменчивости метода измерений. В условиях повторяемости, факторы, перечисленные выше, считают постоянными, и они не влияют на изменчивость, в то время как в условиях воспроизводимости все эти факторы переменны и влияют на изменчивость результатов испытаний. Например, согласно условиям повторяемости, оборудование не должно подвергаться перекалибровке в промежутке времени между измерениями, если только это не является обязательной частью каждого измерения. Кроме того, измерения должны проводиться в течение как можно менее продолжительного периода времени, чтобы свести к минимуму изменения данных факторов, таких как условия окружающей среды, которым не может быть всегда гарантировано постоянство.

Таким образом, повторяемость и воспроизводимость представляют собой два крайних случая прецизионности, где первый характеризует минимальную, а второй - максимальную изменчивость результатов.

При проведении анализа основное предположение заключается в том, что для стандартного метода измерений повторяемость, по крайней мере, приблизительно, одинакова для всех лабораторий, применяющих этот метод, так что допустимо установить одно общее среднее стандартное отклонение повторяемости, которое будет применимо для любой лаборатории.

Прецизионность зависит только от случайных погрешностей и не имеет отношения к истинному или установленному значению измеряемой величины и определяется как среднеквадратическое отклонение (СКО).

<sup>2</sup> Условия повторяемости - условия, при которых независимые результаты измерений (или испытаний) получаются одним и тем же методом на идентичных объектах испытаний, в одной и той же лаборатории, одним и тем же оператором, с использованием одного и того же оборудования, в пределах короткого промежутка времени.

<sup>3</sup> Условия воспроизводимости – условия, при которых результаты измерений (или испытаний) получают одним и тем же методом, на идентичных объектах испытаний, в разных лабораториях, разными операторами, с использованием различного оборудования.

Правильность метода измерений имеет смысл в случаях, когда можно прямо или косвенно представить истинное значение измеряемой величины, или существует принятое опорное значение, поскольку данная характеристика определяет степень близости результата к истинному (действительному) значению измеряемой величины; а также в случае эталона – степень близости среднего значения, полученного на основании большой серии результатов измерений, к принятому опорному значению. Показателем правильности обычно является значение систематической погрешности. Например, при гамма-спектрометрическом анализе систематическая погрешность проявляется в случаях, когда спектрометрический тракт неправильно откалиброван, произошло смещение настроек во времени или прибор подвержен влиянию внешних факторов (температуры, напряжению питания).

С целью оценки точности (правильности и прецизионности) метода измерений целесообразно предположить, что каждый результат измерений ( $y$ ) представляет собой сумму трех составляющих:

$$y = m + B + e, \quad (4.1.1)$$

где (для конкретного исследуемого материала):

$m$  – общее среднее значение (математическое ожидание);

$B$  – лабораторная составляющая систематической погрешности в условиях повторяемости;

$e$  – случайная составляющая погрешности каждого результата измерений в условиях повторяемости.

Общее среднее значение ( $m$ ) представляет собой уровень испытаний, например: образцы урана разного изотопного состава будут соответствовать различным уровням. При проведении анализа изотопного состава неизвестного образца уровень испытаний будет определяться исключительно методом измерений, и такое понятие, как независимое истинное значение<sup>4</sup> ( $\mu$ ), не применяют. Тем не менее, в некоторых случаях понятие истинного значения ( $\mu$ ) испытуемой характеристики может оказаться подходящим, как например, истинный изотопный состав образцовых источников. Уровень ( $m$ ) необязательно равняется истинному значению ( $\mu$ ).

Когда исследуют расхождения между результатами измерений, полученными одним и тем же методом, систематическая погрешность метода не будет оказывать никакого влияния, и ею можно пренебречь. Однако, при сопоставлении результатов измерений со значением, установленным в стандарте со ссылкой на истинное значение ( $\mu$ ), а не на «уровень испытаний» ( $m$ ), либо при сопоставлении результатов, полученных с использованием различных методов измерений, систематическую погрешность метода, естественно, необходимо учитывать.

Составляющая  $B$  считается постоянной в течение выполнения любых серий измерений в условиях повторяемости, но она будет различной по величине для измерений, выполняемых в других условиях. Если результаты измерений в одних и тех же двух лабораториях постоянно сопоставляются, то для них необходимо определить их относительную систематическую погрешность (смещение): либо исходя из их индивидуальных значений систематической погрешности, определенных в ходе эксперимента по оценке точности, либо посредством выполнения специальных исследований собственно между лабораториями. Однако, чтобы сделать общее утверждение относительно различия между двумя произвольными лабораториями, либо при сопоставлении двух лабораторий, в которых не были определены их собственные систематические погрешности, необходимо рассматривать общее распределение лабораторных составляющих систематической погрешности<sup>5</sup>. Следует отметить, что в состав факторов, вносящих свой вклад в  $B$ , входят: различные климатические условия, различия в аппаратуре, в пределах допусков, назначенных изготовителем, и даже различия в процедурах обучения операторов в разных местах.

---

<sup>4</sup> Истинное значение физической величины - значение, которое идеальным образом характеризует в качественном и количественном отношении соответствующую физическую величину.

<sup>5</sup> Лабораторная составляющая систематической погрешности - разность между систематической погрешностью лаборатории при реализации конкретного метода измерений и систематической погрешностью метода измерений.

Дисперсия  $B$  называется межлабораторной и выражается следующим образом:

$$\text{var}(B) = \sigma_L^2, \quad (4.1.2)$$

где  $\sigma_L^2$  включает в себя изменчивость результатов, полученных разными операторами и на разном оборудовании.

Составляющая  $e$  представляет собой случайную погрешность, имеющую место в каждом результате измерений. При расчётах предполагают, что распределение этой составляющей погрешности является приближенно нормальным.

В пределах одной лаборатории дисперсия  $e$  в условиях повторяемости носит название внутрилабораторной дисперсии и выражается следующим образом:

$$\text{var}(e) = \sigma_W^2, \quad (4.1.3)$$

Можно ожидать, что  $\sigma_W^2$  будет иметь различные значения в разных лабораториях вследствие различий, например в настройке оборудования, однако подразумевается, что для стандартизованного метода измерений такие различия между лабораториями будут невелики и что оправдано установление общего значения внутрилабораторной дисперсии для всех лабораторий, использующих данный метод. Это общее значение, которое оценивают средним арифметическим внутрилабораторных дисперсий, носит название дисперсии повторяемости и его обозначают следующим образом:

$$\sigma_r^2 = \overline{\text{var}(e)} = \overline{\sigma_W^2}. \quad (4.1.4)$$

Данное среднее арифметическое берут по всем лабораториям, принимающим участие в эксперименте по оценке точности.

В качестве мер прецизионности используют две величины:

– стандартное отклонение повторяемости

$$\sigma_r = \sqrt{\overline{\text{var}(e)}}; \quad (4.1.5)$$

– стандартное отклонение воспроизводимости

$$\sigma_R = \sqrt{\sigma_L^2 + \sigma_r^2}. \quad (4.1.6)$$

Стоит отметить, что равенства 4.1.2–4.1.6 раздела, относятся к истинным стандартным отклонениям рассматриваемых совокупностей. На практике точные значения стандартных отклонений неизвестны, и оценки значений прецизионности должны быть сделаны на основании относительно небольшой выборки из всех возможных лабораторий, а в пределах данных лабораторий – на основании небольшой выборки из всех возможных результатов измерений.

В статистической практике, когда истинное значение стандартного отклонения  $\sigma$  неизвестно и заменяется оценкой, основанной на выборке, символ  $\sigma$  заменяется на  $s$ , чтобы подчеркнуть, что это – оценка. Это должно быть сделано в каждом из равенств 4.1.2–4.1.6 где:

$s_L^2$  – оценка межлабораторной дисперсии;

$s_W^2$  – оценка внутрилабораторной дисперсии;

$s_r^2$  – среднее арифметическое значение случайной величины  $s_W^2$ , являющееся также оценкой дисперсии повторяемости (сходимости); данное среднее арифметическое значение берется по всем лабораториям, принимающим участие в эксперименте по оценке точности, которые остались после исключения выбросов;

$s_R^2$  – оценка дисперсии воспроизводимости,

$$\text{где } s_R^2 = \sqrt{s_L^2 + s_r^2}. \quad (4.1.7)$$

В качестве примера оценки правильности и прецизионности метода выполнения измерений приводится методика и результаты определения приписанных характеристик погрешности результатов измерения массовой доли  $^{235}\text{U}$  в уране гамма-спектрометрическим методом.

Для установления новых приписанных характеристик погрешности измерений были проведены измерения массовой доли  $^{235}\text{U}$  в уране по стандартным образцам (СО) с



аттестованной массовой долей  $^{235}\text{U}$ , близкой к началу, середине и концу диапазона измерений. Измерения выполнялись согласно установленной методике. Анализ изотопного состава урана производился с помощью спектрометрического тракта на основе LeGe детектора и кода MGAU. Измеряемые образцы находились в непосредственной близости от детектора на оси, соединяющей его предполагаемый геометрический центр с геометрическим центром детектора. Число СО было выбрано с учетом числа поддиапазонов, на которые разбит диапазон действия исследуемой методики: 5 стандартных образцов с обогащением 0,73; 3,6; 21; 36 и 90% соответственно (табл. 4.1.1).

Таблица 4.1.1 Аттестованные характеристики стандартных образцов

ОСО		1	2	3	4	5
Аттестованные характеристики	Массовая доля $^{235}\text{U}$	0,7282	3,5348	21,0022	35,9175	89,9381
	Абсолютная погрешность $\Delta(^{235}\text{U}/^{238}\text{U})$ для $P=0,95$	0,00001	0,000014	0,00014	0,0003	0,013

На выбранных образцах были получены  $L=5$  серий измерений по  $N=10$  результатов измерений в каждой серии<sup>6</sup>. Каждая серия измерений была получена в различных условиях (разные приборы одного и того же типа, разное время, разные операторы и так далее), при этом в пределах одной серии результаты измерений были получены в условиях повторяемости (в пределах короткого интервала времени, одним оператором, на одном и том же приборе).

Результаты измерений по одному из образцов (образец с обогащением 0,73%  $^{235}\text{U}$ ) приведены в табл. 4.1.2.

Таблица 4.1.2. Результаты измерений образцового изотопного источника 0,73 % обогащения

№	Обогащение (%)				
	1	2	3	4	5
1	0,6062	0,6499	0,7171	0,6869	0,7851
2	0,8249	0,6694	0,7913	0,7986	0,6966
3	0,6502	0,7606	0,7983	0,7050	0,7024
4	0,7585	0,6824	0,7602	0,7151	0,7808
5	0,7087	0,7317	0,7724	0,7879	0,7091
6	0,7587	0,7074	0,7450	0,7860	0,7029
7	0,7527	0,7876	0,7268	0,7006	0,6854
8	0,6451	0,7405	0,6751	0,7201	0,7848
9	0,5717	0,6744	0,6621	0,7591	0,7297
10	0,7686	0,7948	0,6811	0,7704	0,7575

До того, как начать выполнение расчетов, необходимо определить степень округления используемых величин. Стандартное отклонение должно выражаться значением, на одну значащую цифру большим, чем количество цифр в исходных данных. В эксперименте по оценке прецизионности, результаты должны регистрироваться (вычисляться) с точностью, по меньшей мере на один знак большей, чем количество значащих цифр, установленное для регистрации результатов измерений стандартным методом. Если метод не устанавливает количество значащих цифр, округление не должно быть грубее половины оценки стандартного отклонения.

<sup>6</sup> Нормативные документы рекомендуют получить не менее  $L = 5$  серий измерений по  $N = 10$  измерений (параллельных определений) в каждой серии, при проведении оценки точности методики и результатов измерений.

**Оценка показателей прецизионности (повторяемости и воспроизводимости) методики выполнения измерений.**

Оценка показателя повторяемости методики

На основании данных, приведенных в табл. 4.1.2, по каждой серии рассчитывается среднее арифметическое  $X_{ml}$  и выборочная дисперсия  $S_{ml}^2$  результатов измерений массовой доли  $^{235}\text{U}$  в  $m$ -ом СО, полученных в условиях повторяемости

$$X_{ml} = \frac{\sum_{i=1}^N X_{mli}}{N}, \quad (4.1.8)$$

$$S_{ml}^2 = \frac{\sum_{i=1}^N (X_{mli} - X_{ml})^2}{N - 1}. \quad (4.1.9)$$

Результаты расчётов  $X_{ml}$  и  $S_{ml}^2$  <sup>7</sup> для приведенных данных показаны в табл. 4.1.3.

Таблица 4.1.3. Расчёт среднего арифметического и выборочной дисперсии

Номер серии	1	2	3	4	5
$X_{ml}$	0,70453	0,71987	0,73294	0,74297	0,73343
$S_{ml}^2$	0,00673	0,00261	0,00239	0,00174	0,00159

На основе полученных значений  $L$  выборочных дисперсий  $S_{ml}^2, \dots, S_{mL}^2$  в  $m$ -ом СО, проверяем гипотезу о равенстве  $L$  дисперсий, используя критерий Кохрена.

Значение критерия Кохрена  $G_{m(\max)}$  рассчитывается по формуле:

$$G_{m(\max)} = \frac{(S_{ml}^2)_{\max}}{\sum_{l=1}^L S_{ml}^2}, \quad (4.1.10)$$

и проводится его сравнение с табличным значением этого критерия  $G_{\text{табл}}$  <sup>8</sup> для числа степеней свободы  $\nu = N - 1$ , соответствующего максимальной дисперсии, и  $f = L$ , соответствующего числу суммируемых дисперсий, и принятой доверительной вероятности  $P = 0,95$ . При  $L = 5, N = 10$   $G_{\text{табл}} = 0,4241$ .

Если  $G_{m(\max)} \geq G_{\text{табл}}$ , то соответствующее  $(S_{ml}^2)_{\max}$  из дальнейших расчетов исключается, процедуру повторяем для следующего по значению  $S_{ml}^2$  и так далее, до тех пор, пока  $G_{m(\max)}$  не станет меньше либо равно  $G_{\text{табл}}$ .

Согласно данным табл. 4.1.2 определяется  $(S_{11}^2)_{\max} = 0,00673$ . Рассчитываем  $G_{1(\max)} = 0,44709$ . Поскольку  $G_{1(\max)} \geq G_{\text{табл}}$ , то значение  $(S_{11}^2)_{\max} = 0,00673$  из дальнейших расчетов исключается, следующее значение  $(S_{12}^2)_{\max} = 0,00261, G_{1(\max)} = 0,31365$ .

Не исключенные из расчетов  $S_{ml}^2$  считаются однородными и по ним оцениваются средние квадратические отклонения (СКО), характеризующие повторяемость результатов

<sup>7</sup> В данном случае, при проведении расчётов индекс  $m=1$ , поскольку рассматривается только один образец, при наличии двух или более образцов индекс  $m$  будет изменяться соответственно номеру образца ( $m=1,2,\dots,M$ ), по которому производится расчёт.

<sup>8</sup> Значения  $G_{\text{табл}}$  приведены в ГОСТ Р ИСО 5725-2-2002

единичного измерения (параллельных определений), полученных для массовой доли  $^{235}\text{U}$ , соответствующей массовой доле  $^{235}\text{U}$  в  $m$ -ом СО. Эти СКО –  $S_{rm}$  рассчитываются по формуле:

$$S_{rm} = \sqrt{\frac{\sum_{l=1}^L S_{ml}^2}{L}}, \quad (4.1.11)$$

где в числе слагаемых нет отброшенных значений.

В нашем случае неисключенные из расчётов  $S_{12}^2$ ,  $S_{13}^2$ ,  $S_{14}^2$ ,  $S_{15}^2$  – однородные. Тогда среднее квадратическое отклонение принимает значение  $S_{r1}=0,04562$ .

Показатель повторяемости методики выполнения измерений в виде СКО –  $\sigma_{rm}$  для массовой доли  $^{235}\text{U}$ , соответствующей массовой доле  $^{235}\text{U}$  в  $m$ -ом СО, устанавливается, принимая равным  $S_{rm}$ :

$$\sigma_{rm} \approx S_{rm}.$$

Тогда показатель повторяемости методики в виде критического диапазона (предела повторяемости  $r_{nm}$ )<sup>9</sup> –  $CR_{0,95}$  для массовой доли  $^{235}\text{U}$ , соответствующей массовой доле  $^{235}\text{U}$  в  $m$ -ом СО, рассчитывается по формуле:

$$CR_{0,95} = Q(P, n) \cdot \sigma_{rm}, \quad (4.1.12)$$

где  $n$  - число параллельных определений, предусмотренных методикой для получения результата измерений,

$$Q(P, n) = 2,77 \text{ при } n=2, P=0,95$$

$$Q(P, n) = 3,31 \text{ при } n=3, P=0,95$$

$$Q(P, n) = 3,63 \text{ при } n=4, P=0,95$$

$$Q(P, n) = 3,86 \text{ при } n=5, P=0,95$$

$$Q(P, n) = 4,0 \text{ при } n=6, P=0,95$$

В нашем случае при  $n=5$  показатель повторяемости в виде критического диапазона равен  $CR_{0,95}=0,17608$ .

#### **Оценка показателя воспроизводимости методики выполнения измерений**

Рассчитывается выборочное СКО результатов измерений  $m$ -го СО, полученных в условиях воспроизводимости, –  $S_{Rm}$  по формуле:

$$S_{Rm} = \sqrt{\frac{\sum_{l=1}^L (X_{ml} - X_m)^2}{L-1} + \left(\frac{1}{n} - \frac{1}{N}\right) \cdot S_{rm}^2}, \quad m = 1, \dots, M \quad (4.1.13)$$

где  $X_m$  – общее среднее значение результатов измерений, полученных в условиях воспроизводимости.

$X_m$  рассчитывается по формуле:

$$X_m = \frac{\sum_{l=1}^L X_{ml}}{L}. \quad (4.1.14)$$

<sup>9</sup> Предел повторяемости  $r_{nm}$  - допускаемое для принятой вероятности 95% абсолютное расхождение между наибольшим и наименьшим из  $n$  результатов единичного анализа, полученных в условиях повторяемости. В методиках анализа, как правило, предусмотрено получение результата анализа как среднего из  $n$  параллельных определений.

Значение  $X_1=0,72675$ , а выборочное СКО результатов измерений  $S_{R1}=0,00036$ .

Принимая  $\sigma_{R1} \approx S_{R1}$ , определяется предел воспроизводимости  $R_1$ .

Показатель воспроизводимости (МВИ) в виде СКО –  $\sigma_{Rm}$  для массовой доли  $^{235}\text{U}$ , соответствующей массовой доле  $^{235}\text{U}$  в  $m$ -ом СО, устанавливаем, принимая равным  $S_{Rm}$ :

$$\sigma_{Rm} \approx S_{Rm}.$$

Показатель воспроизводимости методики в виде предела воспроизводимости –  $R_m$  для массовой доли  $^{235}\text{U}$ , соответствующей массовой доле  $^{235}\text{U}$  в  $m$ -ом СО, рассчитывается по формуле:

$$R_m = Q(P,2) \cdot \sigma_{Rm}, \quad (4.1.15)$$

где  $Q(P,2) = 2,77$  при  $P=0,95$ .

Предел воспроизводимости  $R_1=0,00099$ .

Примечание: Значение предела воспроизводимости  $R_m$  используют при проверке приемлемости результатов анализа, полученных в условиях воспроизводимости.

В случае невозможности организации эксперимента в разных лабораториях, экспериментальные данные получают в одной лаборатории в условиях внутрилабораторной прецизионности (серии результатов единичного анализа получают в разное время, разные операторы, используя разные партии материалов одного типа и т.п.). Результаты единичного анализа внутри каждой серии получают в условиях повторяемости. В этом случае показатель воспроизводимости методики анализа в виде СКО рассчитывают по формуле:

$$\sigma_{Rm} \approx k \cdot S_{R,m}, \quad (4.1.16)$$

где  $S_{R,m}$  – выборочное СКО результатов анализа, рассчитанное в соответствии с формулой 4.1.13 на основе результатов, полученных в условиях внутрилабораторной прецизионности;

$k$  – коэффициент, учитывающий условия проведения эксперимента.  $k$  может принимать значения от 1,2 до 2,0.

#### **Оценка показателя правильности методики выполнения измерений**

Рассчитывается оценка математического ожидания систематической погрешности методики –  $\Theta_m$ , как разность между средним значением результатов измерений  $X_m$  и аттестованным значением  $m$ -го СО –  $C_m$ :

$$\Theta_m = X_m - C_m, \quad m = 1, \dots, M \quad (4.1.17)$$

Согласно свидетельству на стандартный образец изотопного состава урана, аттестованное значение СО –  $C_1$  равно 0,7282 %, тогда  $\Theta_1 = -0,00145$ .

Проверяется значимость вычисленных значений  $\Theta_m$  по критерию Стьюдента. Для этого рассчитываем значение  $t$ - критерия для  $m$ -го СО –  $t_m$  по формуле:

$$t_m = \frac{|\Theta_m|}{\sqrt{\frac{S_m^2}{L} + \frac{\Delta_{0m}^2}{3}}}, \quad (4.1.18)$$

где  $S_m^2 = \frac{\sum_{l=1}^L (X_{ml} - X_m)^2}{L-1}$  – дисперсия, характеризующая разброс средних арифметических значений результатов единичного анализа  $X_{ml}$ , полученных для  $l$ -й серии, относительно среднего значения результатов анализа  $X_m$ ;

$\Delta_0$  – абсолютная погрешность аттестованного значения  $m$ -го СО.

Согласно свидетельству на стандартный образец изотопного состава урана, абсолютная погрешность аттестованного значения СО равна  $\Delta_0 = 0,00001$ , тогда  $t_1 = 0,21802$ .

Полученное значение  $t_m$  сравнивается с  $t_{табл}^{10}$  при числе степеней свободы  $f = L - 1$  для доверительной вероятности  $P = 0,95$ . При  $L = 5$  и  $P = 0,95$  значение  $t_{табл} = 2,78$ .

Поскольку  $t_m \leq t_{табл}$ , то оценка систематической погрешности незначима на фоне случайного разброса, и в этом случае ее принимаем равной нулю ( $\Theta_m = 0$ ).

Если  $t_m > t_{табл}$ , то оценка систематической погрешности значима на фоне случайного разброса и для принятия решения о приемлемости методики анализа вводят еще один дополнительный критерий:

$$|\Theta_m| \leq \xi \cdot \sigma_{Rm}, \quad (4.1.19)$$

где  $\xi$  может принимать значения от 0,5 до 1 в зависимости от используемых в методике анализа метода, условий, средств измерений и тому подобное, а также характеристик объекта анализа.

При выполнении данного критерия может быть принято решение о введении в результаты анализа, получаемые при реализации данной методики, поправки на значение  $\Theta$ , то есть значение  $\Theta$ , соответствующее содержанию  $C - \Theta(C)$ , вычитают из любого результата анализа, полученного по методике.

Если данный критерий не выполняется, принимают решение о доработке методики.

При незначимости  $\Theta$  или при принятии для методики анализа решения о введении в результаты анализа поправки, показатель правильности методики выполнения измерений верхнюю ( $\Delta_{с.в.м}$ ) и нижнюю ( $\Delta_{с.н.м}$ ) границы, в которых неисключенная систематическая погрешность методики (для массовой доли  $^{235}\text{U}$ , соответствующей массовой доле  $^{235}\text{U}$  в  $m$ -ом СО), находится с принятой вероятностью  $P = 0,95$ , рассчитывается по формуле:

$$\Delta_{с.в.м} = |\Delta_{с.н.м}| = \Delta_{см} = 1,96 \cdot \sqrt{\frac{S_m^2}{L} + \frac{\Delta_{0m}^2}{3}} = 1,96 \cdot \sigma_{см}. \quad (4.1.20)$$

Верхняя ( $\Delta_{с.в.1}$ ) и нижняя ( $\Delta_{с.н.1}$ ) границы равны  $\Delta_{с.в.1} = |\Delta_{с.н.1}| = \Delta_{с1} = 0,01305$ .

#### **Оценка показателя точности методики выполнения измерения**

Верхнюю ( $\Delta_{вм}$ ) и нижнюю ( $\Delta_{нм}$ ) границы, в которых погрешность результата измерений (для массовой доли  $^{235}\text{U}$ , соответствующей массовой доле  $^{235}\text{U}$  в  $m$ -ом СО) находится с принятой вероятностью  $P = 0,95$ , рассчитываем по формуле:

$$\Delta_{вм} = |\Delta_{нм}| = \Delta_{см} = 1,96 \cdot \sqrt{\sigma_{Rm}^2 + \sigma_{см}^2} = 1,96 \cdot \sigma_m(\Delta). \quad (4.1.21)$$

Верхняя ( $\Delta_{в1}$ ) и нижняя ( $\Delta_{н1}$ ) границы равны  $\Delta_{в1} = |\Delta_{н1}| = \Delta_1 = 0,01307$ .

Аналогично проводятся расчёты для остальных стандартных образцов. Таким образом, определяются значения погрешности (оценки точности) для каждого поддиапазона измерений массовой доли  $^{235}\text{U}$  в уране по данной методике.

#### **NS4.1.2 Смещенные (систематические) и случайные погрешности**

Под результатом измерения понимают конечный результат, который получается в процессе обработки результатов наблюдений, полученных при осуществлении измерительных процедур. Этот результат включает оценку измеренного значения измеряемой величины и погрешность, с которой оно измерено. Так как оценка погрешности имеет вероятностный

<sup>10</sup> Значения  $t_{табл}$  приведены в ГОСТ 8.207-76

характер, она должна содержать указание доверительной вероятности, с которой эта оценка произведена.

Причины, приводящие к возникновению погрешностей, называют факторами влияния. Факторами влияния могут быть температура, давление, флуктуация токов и зарядов в детекторах и в электронных цепях измерительных приборов и т.д. Фактором влияния может быть также неполное соответствие модели измерения характеру измеряемой величины. Погрешность – есть результат воздействия одного или нескольких факторов влияния на процесс измерения. По характеру зависимости от факторов влияния, все погрешности измерений принято делить на два вида – систематические и случайные.

Систематической погрешностью называется составляющая погрешности измерения, остающаяся постоянной или закономерно меняющаяся при повторных измерениях одной и той же величины. Термин «систематическая погрешность» имеет несколько противоречивое значение для статистиков: некоторые авторы предпочитают использовать термин «bias» (систематическая ошибка, смещение) или «short-term bias» (кратковременное смещение). Предполагается, что систематические погрешности представляют собой определенную функцию неслучайных факторов, состав которых зависит от физических, конструкционных и технологических особенностей средств измерений, условий их применения, а также индивидуальных качеств наблюдателя. Сложные детерминированные закономерности, которым подчиняются систематические погрешности, определяются либо при создании средств измерений и комплектации измерительной аппаратуры, либо непосредственно при подготовке измерительного эксперимента и в процессе его проведения. Совершенствование методов измерения, использование высококачественных материалов, прогрессивная технология – все это позволяет на практике устранить систематические погрешности настолько, что при обработке результатов наблюдений их вклад не учитывают.

Систематические погрешности принято классифицировать в зависимости от причин их возникновения и по характеру их проявления при измерениях.

В зависимости от причин возникновения, рассматриваются четыре вида систематических погрешностей.

1. Погрешности метода, или теоретические погрешности, проистекающие от ошибочности или недостаточной разработки принятой теории метода измерений в целом, или от допущенных упрощений при проведении измерений.

Погрешности метода возникают также при экстраполяции свойства, измеренного на ограниченной части некоторого объекта, на весь объект, если последний не обладает однородностью измеряемого свойства. Так, при определении обогащения урана путём гамма-спектрометрического анализа некоторой пробы возникает систематическая погрешность, если проба содержала некоторое количество примесей, а результат измерения принимается за характеристику данного вещества – в целом.

К погрешностям метода следует отнести также те погрешности, которые возникают, вследствие влияния измерительной аппаратуры на измеряемые свойства объекта. Подобные явления возникают, например, при регистрации быстропротекающих процессов недостаточно быстродействующей аппаратурой, при измерениях обогащения приборами с неправильной калибровкой, при измерениях детекторами с плохой разрешающей способностью и так далее.

2. Инструментальные погрешности, зависящие от погрешностей применяемых средств измерений. Исследование инструментальных погрешностей является предметом специальной дисциплины — теории точности измерительных устройств.

3. Погрешности, обусловленные неправильной установкой и взаимным расположением средств измерения, являющихся частью единого комплекса, несогласованностью их характеристик, влиянием внешних температурных, гравитационных, радиационных и других полей, нестабильностью источников питания, несогласованностью входных и выходных параметров электрических цепей приборов и так далее.

4. Личные погрешности, обусловленные индивидуальными особенностями наблюдателя. Такого рода погрешности вызываются, например, запаздыванием или опережением при регистрации сигнала, неправильной записью числа, грубым округлением при обработке результатов измерений.

По характеру своего поведения в процессе измерения систематические погрешности подразделяются на постоянные и переменные.

Постоянные систематические погрешности возникают, например, при неправильной калибровке детектора, при неправильной настройке схемы «полус-ноль», и остаются постоянными при всех повторных наблюдениях. Поэтому, если уж они возникли, их очень трудно обнаружить в результатах наблюдений.

Среди переменных систематических погрешностей принято выделять прогрессивные и периодические.

Прогрессивная погрешность возникает, например, при взвешивании, когда одно из коромысел весов находится ближе к источнику тепла, чем другое, поэтому быстрее нагревается и удлиняется. Это приводит к систематическому сдвигу начала отсчета и к монотонному изменению показаний весов.

Периодическая погрешность присуща, например, измерительным приборам с круговой шкалой, если ось вращения указателя не совпадает с осью шкалы.

Все остальные виды систематических погрешностей принято называть погрешностями, изменяющимися по сложному закону.

В тех случаях, когда при создании средств измерений, необходимых для данной измерительной установки, не удастся устранить влияние систематических погрешностей, приходится специально организовывать измерительный процесс и осуществлять математическую обработку результатов. Методы борьбы с систематическими погрешностями заключаются в их обнаружении и последующем исключении путем полной или частичной компенсации. Основные трудности, часто непреодолимые, состоят именно в обнаружении систематических погрешностей, поэтому иногда приходится проводить приближенный анализ.

#### ***Способы обнаружения систематических погрешностей***

Результаты наблюдений, полученные при наличии систематических, а также средние арифметические значения и отклонения, вычисленные в этих условиях, погрешностей называются неисправленными. Для нахождения исправленного среднего арифметического и оценки его рассеивания относительно истинного значения измеряемой величины необходимо обнаружить систематические погрешности и исключить их, путем введения поправок или соответствующей каждому конкретному случаю организации самого измерения. Таким образом, исправленным называется результат измерения, получаемый после внесения поправок в неисправленный результат измерения, с целью устранения систематических погрешностей.

Постоянные систематические погрешности не влияют на значения случайных отклонений результатов наблюдений от средних арифметических, поэтому никакая математическая обработка результатов наблюдений не может привести к их обнаружению. Анализ таких погрешностей возможен только на основании некоторых априорных знаний об этих погрешностях, получаемых, например, при проверке средств измерений. Измеряемая величина при проверке обычно воспроизводится образцовой мерой, действительное значение которой известно. Поэтому разность между средним арифметическим результатов наблюдения и значением меры с точностью, определяемой погрешностью аттестации меры и случайными погрешностями измерения, равна искомой систематической погрешности.

Одним из наиболее действенных способов обнаружения систематических погрешностей в ряде результатов наблюдений является построение графика последовательности неисправленных значений случайных отклонений результатов наблюдений от средних арифметических.

Рассматриваемый способ обнаружения постоянных систематических погрешностей можно сформулировать следующим образом: если неисправленные отклонения результатов наблюдений резко изменяются при изменении условий наблюдений, то данные результаты содержат постоянную систематическую погрешность, зависящую от условий наблюдений.

Систематические погрешности являются детерминированными величинами, поэтому могут быть вычислены и исключены из результатов измерений.

Для исправления результатов наблюдений их складывают с поправками, равными систематическим погрешностям по величине и обратными им по знаку. Поправку определяют

экспериментально при поверке приборов или в результате специальных исследований, обыкновенно с некоторой ограниченной точностью.

Поправки могут задаваться также в виде формул, по которым они вычисляются для каждого конкретного случая. Введением поправки устраняется влияние только одной вполне определенной систематической погрешности, поэтому в результаты измерения зачастую приходится вводить очень большое число поправок. При этом, вследствие ограниченной точности определения поправок, накапливаются случайные погрешности и дисперсия результата измерения увеличивается.

Систематическая погрешность, остающаяся после введения поправок на ее наиболее существенные составляющие, включает в себя ряд элементарных составляющих, называемых неисключенными остатками систематической погрешности. К их числу относятся погрешности:

- определения поправок;
- зависящие от точности измерения влияющих величин, входящих в формулы для определения поправок;
- связанные с колебаниями влияющих величин (температуры окружающей среды, напряжения питания и так далее).

Перечисленные погрешности малы, и поправки на них не вводятся.

Случайной погрешностью называется составляющая погрешности средства измерений, изменяющаяся случайным образом. Поскольку данный вид погрешности имеет случайный знак и случайное численное значение, то её среднее значение – математическое ожидание – равно нулю. Поэтому мерой случайного отклонения принято считать квадрат отклонения, который в любом отклонении, как со знаком «плюс», так и со знаком «минус», будет положителен. Квадрат отклонения, приходящийся в среднем на одно наблюдение, называют стандартным отклонением, или среднеквадратическим отклонением (СКО). СКО оценивают по выборке многократных параллельных наблюдений измеряемой величины по формуле:

$$S = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^n (x_i - \bar{x})^2}{n-1}}, \quad (4.1.22)$$

Где  $x_i$  –  $i$ -ое значение измеряемой величины в исследуемой выборке;

$\bar{x}$  – среднее по выборке значение измеряемой величины;

$n$  – объём выборки.

Значение  $S$  в данной формуле, является оценкой стандартного отклонения  $\sigma$ , характеризующего генеральную совокупность. Конечно, оценка  $S$  произведённая для ограниченной выборки, менее точна, чем  $\sigma$ , однако, на практике чаще всего применяется именно оценка  $S$ , так как статистика измерений всегда ограничена. В табл.4.1.4 приведены среднеквадратические отклонения для оценок СКО  $S(n)$ , вычисленных по выборкам объёма  $n$ , взятых их одной и той же генеральной совокупности, то есть, величины  $S[S(n)]$ , причём, значения  $S[S(n)]$  отнесены к значению  $\sigma$  для этой же генеральной совокупности<sup>11</sup>.

Таблица 4.1.4 Среднеквадратические отклонения для оценок СКО  $S(n)$

Объём выборки	2	3	4	5	10	20	30	50
$\frac{S[S(n)]}{\sigma}, \%$	76	52	42	36	24	16	13	10

Стандартное отклонение  $\sigma$  (и его оценка  $S$ ) характеризует 2/3 статистически возможных для рассматриваемого распределения отклонений  $(x_i - \bar{x})$  и означает, что в 2/3 случаев упомянутое отклонение не превышает значения  $\sigma$  (оценки  $S$ ). Другими словами, параметр  $\sigma$  описывает возможные отклонения  $(x_i - \bar{x})$  с доверительной вероятностью  $P \approx 2/3 \approx 0,67$ .

<sup>11</sup> Данные таблицы взяты из «Руководства по выражению неопределенностей в измерении»



Однако остаётся ещё 1/3 возможных отклонений, которые больше, чем  $\sigma$  (или  $S$ ). Границу этих больших отклонений  $\varepsilon$  оценивают по формуле:

$$\varepsilon = t \cdot \sigma \text{ или } \varepsilon = t \cdot S, \quad (4.1.23)$$

где  $t$  – коэффициент покрытия, который зависит от вида статистического распределения и от доли возможных отклонений, которые принимаются во внимание, то есть, от доверительной вероятности  $P$ .

Чаще всего оценки  $\varepsilon$  делают для  $P = 0,95$  и  $P = 0,99$ . Значения коэффициента  $t$  для различных распределений и значений  $P$  берут в специальных статистических таблицах.

Распределения, которым подчиняются данные наблюдений при измерениях, чаще всего являются распределениями Стьюдента и нормальное (или Гауссово). При регистрации продуктов радиоактивного распада это распределение Пуассона, которому подчиняются закономерности радиоактивного распада.

В качестве примера производится расчёт систематической и случайной погрешностей результатов многократных измерений изотопного состава стандартного образца урана, полученных при гамма - спектрометрическом анализе.

Было проведено 20 измерений стандартного образца с обогащением 0,73% (табл. 4.1.5).

Таблица 4.1.5. Результаты измерений образцового изотопного источника 0,73 % обогащения

№	Обогащение, %	№	Обогащение, %	№	Обогащение, %	№	Обогащение, %
1	0,5362	6	0,6874	11	0,6877	16	0,6353
2	0,8137	7	0,5824	12	0,7877	17	0,7433
3	0,8737	8	0,6444	13	0,7334	18	0,6996
4	0,7761	9	0,7691	14	0,6467	19	0,7937
5	0,6055	10	0,7287	15	0,7838	20	0,7171

При статистической обработке группы результатов наблюдений следует выполнить ряд последовательных операций.

1. Исключение известных систематических погрешностей из результатов наблюдений.

Способы обнаружения грубых погрешностей должны быть указаны в методике выполнения измерений. В нашем случае (согласно расчётам, сделанным в предыдущем разделе) оценка систематической погрешности незначима на фоне случайного разброса и можно принять  $\Theta = 0$ .

2. Вычисление среднего арифметического исправленных результатов наблюдений, принимаемое за результат измерения.

3. Определение среднего значения результатов измерений:

$$\bar{x} = \frac{\sum_{i=1}^n x_i}{n}. \quad (4.1.24)$$

По данным таблицы 4.1.5 вычисляем  $\bar{x} = 0,7123$ .

4. Оценку среднего квадратического отклонения результата наблюдения согласно уравнению 4.1.22.

В нашем случае СКО равно  $S = 0,08531$ .

5. Оценка среднего квадратического отклонения результата измерения.

$$S_x = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^n (x_i - \bar{x})^2}{n(n-1)}} = \frac{S}{\sqrt{n}} \quad (4.1.25)$$

Поскольку  $S = 0,08531$ , то  $S_x = 0,01957$ .

6. Проверка гипотезы о том, что результаты наблюдений принадлежат нормальному распределению.

Проверку гипотезы о том, что результаты наблюдений принадлежат нормальному распределению, следует проводить с уровнем значимости  $q$  от 10 до 2%. Конкретные значения уровней значимости должны быть указаны в конкретной методике выполнения измерений.

При числе результатов наблюдений  $n > 50$ , для проверки принадлежности их к нормальному распределению, предпочтительным является один из критериев:  $\chi^2$  Пирсона или  $\omega^2$  Мизеса-Смирнова.

При числе результатов наблюдений  $50 > n > 15$ , для проверки принадлежности их к нормальному распределению, предпочтительным является составной критерий.

При числе результатов наблюдений  $n \leq 15$ , принадлежность их к нормальному распределению не проверяют. При этом нахождение доверительных границ случайной погрешности результата измерения возможно в том случае, если заранее известно, что результаты наблюдений принадлежат нормальному распределению.

В нашем случае, число результатов наблюдений  $n < 50$ , и нормальность их распределения проверяется при помощи составного критерия.

Для определения критерия вычисляется отношение:

$$\tilde{d} = \frac{\sum_{i=1}^n |x_i - \bar{x}|}{n \cdot S^*}, \quad (4.1.26)$$

где  $S^*$  – смещенная оценка среднего квадратического отклонения, вычисляемая по формуле:

$$S^* = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^n (x_i - \bar{x})^2}{n}}. \quad (4.1.27)$$

Результаты наблюдений группы можно считать распределенными нормально, если выполняется неравенство:

$$d_{1-q_1/2} < \tilde{d} \leq d_{q_1/2}, \quad (4.1.28)$$

где  $d_{1-q_1/2}$  и  $d_{q_1/2}$  – квантили распределения, которые принимаются согласно данным статистической таблицы<sup>12</sup> по  $n, q_1/2$ , и  $(1 - q_1/2)$ , причем  $q_1$  – заранее выбранный уровень значимости критерия<sup>13</sup>.

Вычисляется  $\tilde{d}$  с учётом того, что  $S^* = 0,08315$ .

Согласно принятым исходным и расчетным данным  $\tilde{d} = 0,8242$  (при  $n=21$  ( $q_1/2=5\%$ ),  $d_{q_1/2} = 0,8768$  и  $d_{1-q_1/2} = 0,6950$ ). Рассчитанное отношение  $\tilde{d}$  находится в диапазоне  $0,6950 < \tilde{d} \leq 0,8768$ . Из этого следует, что результаты наблюдений принадлежат нормальному распределению.

7. Вычисление доверительных границ случайной погрешности (случайной составляющей погрешности) результата измерения.

Доверительные границы  $\varepsilon$  (без учета знака) случайной погрешности результата измерения находят по формуле:

$$\varepsilon = t \cdot S_{\bar{x}},$$

<sup>12</sup> Таблица приведена в ГОСТ 8.207-76

<sup>13</sup> Проверку гипотезы о том, что результаты наблюдений принадлежат нормальному распределению, следует проводить с уровнем значимости  $q_1$  от 10 до 2%.

где  $t$  - коэффициент Стьюдента, который в зависимости от числа результатов наблюдений  $n$  (при доверительной вероятности  $P = 0,95$ ) находится согласно данным, приведенным в таблице Приложения 2.

Для числа наблюдений  $n=20$  и  $t = 2,09$   $\varepsilon = 0,04090$ .

8. Вычисление границы неисключенной систематической погрешности (неисключенных остатков систематической погрешности) результата измерения.

При суммировании составляющих неисключенной систематической погрешности результата измерения, неисключенные систематические погрешности средств измерений каждого типа и погрешности поправок рассматривают как случайные величины. При отсутствии данных о виде распределения случайных величин, их распределения принимают за равномерные.

Границы неисключенной систематической погрешности  $\theta$  результата измерения вычисляют путем построения композиции неисключенных систематических погрешностей средств измерений, метода и погрешностей, вызванных другими источниками. При равномерном распределении неисключенных систематических погрешностей эти границы (без учета знака) можно вычислить по формуле:

$$\theta = k \cdot \sqrt{\sum_{i=1}^m \theta_i^2}, \quad (4.1.29)$$

где  $\theta_i$  – граница  $i$ -й неисключенной систематической погрешности;

$k$  – коэффициент, определяемый принятой доверительной вероятностью. Коэффициент  $k$  принимают равным 1,1 при доверительной вероятности  $P = 0,95$ . При доверительной вероятности  $P = 0,99$  коэффициент  $k$  принимают равным 1,4, если число суммируемых неисключенных систематических погрешностей более четырех ( $m > 4$ ). Если же число суммируемых погрешностей равно четырем или менее четырех ( $m \leq 4$ ), то коэффициент  $k$  определяют по графику  $k = f(m, l)$  зависимости (см. ГОСТ 8.207-76).

Доверительную вероятность для вычисления границ неисключенной систематической погрешности принимают той же, что при вычислении доверительных границ случайной погрешности результата измерения.

В предыдущем разделе были рассчитаны границы неисключенной систематической погрешности используемой методики для выбранного примера:

$\theta_1 = \Delta_{c.v.1} = |\Delta_{c.n.1}| = \Delta_{c1} = 0,01305$ . Используя только эту погрешность, рассчитываются границы неисключенной систематической погрешности  $\theta$  результата измерения ( $\theta = 0,014355$ ).

9. Вычисление доверительных границ погрешности результата измерения<sup>14</sup>.

Если  $\frac{\theta}{S_x} < 0,8$ , то неисключенными систематическими погрешностями по сравнению со случайными можно пренебречь<sup>15</sup>. В этом случае принимается, что граница погрешности результата  $\Delta = \varepsilon$ . Если  $\frac{\theta}{S_x} > 0,8$ , то случайной погрешностью по сравнению с систематическими пренебрегают и принимают, что граница погрешности результата  $\Delta = \theta$ .

В случае, когда данные неравенства не выполняются, границу погрешности результата измерения находят путем построения композиции распределений случайных и неисключенных систематических погрешностей, рассматриваемых как случайные величины, подобно определению границ неисключенной систематической погрешности. Если доверительные

<sup>14</sup> Для определения доверительных границ погрешности результата измерения доверительную вероятность  $P$  принимают равной 0,95

<sup>15</sup> Погрешность, возникающая из-за пренебрежения одной из составляющих погрешности результата измерения при выполнении указанных неравенств, не превышает 15%.

границы случайных погрешностей найдены в соответствии с требованиями по числу результатов, то допускается границы погрешности результата измерения  $\Delta$  (без учета знака) вычислить по формуле:

$$\Delta = K \cdot S_{\Sigma}, \quad (4.1.30)$$

где  $K$  – коэффициент, зависящий от соотношения случайной и неисключенной систематической погрешностей;

$S_{\Sigma}$  - оценка суммарного среднего квадратического отклонения результата измерения.

Оценку суммарного среднего квадратического отклонения результата измерения вычисляется по формуле:

$$S_{\Sigma} = \sqrt{\sum_{i=1}^m \frac{\theta_i^2}{3} + S_x^2} \quad (4.1.31)$$

Коэффициент  $K$  вычисляется по эмпирической формуле:

$$K = \frac{\varepsilon + \theta}{S_x^2 + \sqrt{\sum_{i=1}^m \frac{\theta_i^2}{3}}}. \quad (4.1.32)$$

В рассматриваемом случае выполняется первое неравенство, поскольку  $\frac{\theta}{S_x} = 0,7335 < 0,8$ . Следовательно, граница погрешности результата  $\Delta = \varepsilon = 0,04090$ .

#### 10. Запись результатов измерений

При симметричной доверительной погрешности результаты измерений стандартно представляют в форме:

$$\bar{X} \pm \Delta, P,$$

где  $\bar{X}$  – результат измерения.

Числовое значение результата измерения должно оканчиваться цифрой того же разряда, что и значение погрешности  $\Delta$ .

Доверительная погрешность для данного примера запишется:  $0,7123 \pm 0,04090, 0,95$ .

При отсутствии данных о виде функций распределений составляющих погрешности результата и необходимости дальнейшей обработки результатов или анализа погрешностей, результаты измерений представляют в форме:

$$\bar{X}; S_x, n; \theta.$$

#### **NS4.1.3 Уровни детектирования**

Важные понятия в теории измерений - это предел обнаружения и предел измерения. Предел обнаружения характеризует количество вещества (размер микрочастицы, концентрацию и т.д.), которое возможно обнаружить и заявить, что его след присутствует в пробе, но неизвестно точно в каком количестве. Предел измерения характеризует такое количество вещества, которое может быть точно измерено.

В теории различают несколько пределов: теоретический предел обнаружения, инструментальный предел обнаружения, предел обнаружения метода и предел измерения. Так как природа объекта измерения, измерительный прибор и сам метод в рамках рутинного анализа не всегда рассматриваются по отдельности, на практике для удобства различают всего два предела: предел обнаружения и предел измерения. Для каждой отдельной прикладной науки определения пределов будут разными. Ниже приведены наиболее общие и универсальные определения, передающие ключевой смысл понятия:

Теоретический предел обнаружения – это такое количество вещества (размер частицы, концентрация элемента, любые геометрические размеры объекта, вес), которое теоретически может быть обнаружено, которое способно дать сигнал отличный от нуля (от пустой пробы).

Инструментальный предел обнаружения – это такое количество вещества, которое способно дать сигнал, различимый на фоне шума данного измерительного прибора.

Предел обнаружения метода – это такое количество вещества, наличие которого определяется с 99% вероятностью и которое может быть измерено в рамках данного метода (определяется для каждого конкретного вещества, матрицы, формы, условий эксперимента).

Предел измерения – это минимальное количество вещества, характеристики которого могут быть точно измерены с высокой степенью достоверности (что противоположно по смыслу просто обнаружению).

Для целей практического применения различают:

– предел обнаружения – это такое количество вещества, которое может быть обнаружено данным измерительным прибором при данных условиях.

– предел измерения – по некоторым источникам это величина в 3,3 раза превышающая предел обнаружения.

В отношении обнаружения используют понятие ошибок первого ( $\alpha$ ) и второго ( $\beta$ ) рода. Ошибка первого рода – это отказ от верной гипотезы. Например, отказ от присутствия элемента в пробе, когда он на самом деле там присутствует. Ошибка второго рода – принятие ложной гипотезы. Например, когда существует вероятность принять решения о присутствии элемента в пробе, когда на самом деле его там нет.

Способы расчета пределов обнаружения и измерения различны в зависимости от сферы применения, измерительного прибора, метода и объекта измерения. Расчет пределов обнаружения и измерения для сложных измерительных приборов связан с учетом многих влияющих факторов и параметров, зависящих от внутреннего устройства прибора, конструктивных материалов, природы процесса регистрации и самого объекта измерения. В качестве примера в данном разделе рассматриваются пределы детектирования, часто используемые в расчетных кодах для гамма-спектрометрического анализа. Другой пример приведен в разделе курса, посвященном нейтронно-активационному анализу (раздел 4.6.2).

#### ***Минимальный уровень детектирования***

В прикладной спектроскопии ионизирующих излучений особое место занимает проблема обнаружения, идентификации и количественной оценки радионуклидов, когда их содержание в анализируемой пробе мало. Эту проблему условно можно разделить на две части: обнаружение интересующих радионуклидов в пробе с низкой суммарной активностью и определение радионуклидов на примесном уровне в пробе с достаточно высокой активностью. Первую задачу можно сформулировать как измерение малых количеств радиоактивности на слабом фоне, а вторую задачу определить, как измерение слабых активностей на сильном фоне. В качестве критерия оценки чувствительности радиометрической аппаратуры (пределов обнаружения и измерения малых активностей) используют минимальную детектируемую активность (МДА).

Из многих математических выражений для МДА, являющейся метрологической характеристикой измерительной установки, можно выделить, по крайней мере, четыре разных типа. Для упрощения эти понятия МДА рассматриваются с точки зрения скоростей счета импульсов детектора и называются:

– критический уровень или порог распознавания  $L_c$  ;

– предел детектирования  $L_d$  ;

– уровень не больше  $L_{1-t}$  ;

– предел количественного определения  $L_q$  .

*Критический уровень или порог распознавания  $L_c$*

Критический уровень или порог распознавания (Critical Level, Decision Threshold) применяют для анализа энергетического спектра пробы в тех случаях, когда требуется ответить на вопрос: присутствует ли в измеряемой пробе такое количество радиоактивного вещества, которое при регистрации детектором создает чистую скорость счета (за вычетомклада фона, т.е. полезный сигнал), среднее значение которой превышает заданный уровень флуктуации фона? Критический уровень определяют как величину, кратную стандартной неопределенности

фоновой скорости счета. Такой подход является наиболее общим при определении понятия МДА.

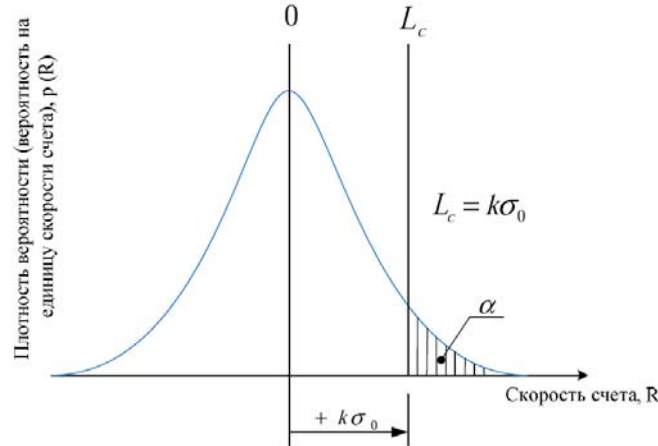


Рис. 4.1.2. Критический уровень

На рис. 4.1.2 показано нормальное распределение скорости счета нулевой пробы, для которой среднее значение чистой скорости счета равно нулю ( $R_s = 0$ ), в присутствии фона со скоростью счета  $R_b$ . Величина критического уровня  $L_c$  определяется выражением:

$$L_c = k \cdot \sigma_0, \quad (4.1.33)$$

где  $k$  – односторонний коэффициент<sup>16</sup>, который определяет уровень доверительной вероятности для измеряемой скорости счета, и  $\sigma_0$  – стандартная неопределенность (среднее квадратическое отклонение – СКО) чистой скорости счета нулевой пробы. Если выбрать  $k = 1,65$  при  $R_s > L_c$ , вероятность ошибки первого рода не превысит 0,05 (ошибка первого рода – принятие флуктуации фона в качестве полезного сигнала с вероятностью  $\alpha$ ; ошибка второго рода – пропуск полезного сигнала, который принимается за флуктуацию фона с вероятностью, равной  $\beta$ ). Если  $R_s < L_c$ , то можно говорить лишь о том, что общая скорость счета измеряемой пробы  $R_t$  статистически не отличается от фоновой скорости счета на уровне 0,05. Ниже приведен вывод формулы для уровня  $L_c$  через стандартную неопределенность фоновой скорости счета  $\sigma_s$ .

Так как  $R_s = R_0 = R_t - R_b = 0$ , то  $\sigma_0^2 = \sigma_t^2 + \sigma_b^2$ ; (4.1.34)

$$\sigma_t^2 = \frac{R_t}{T_t} = \frac{R_b}{T_t}; \quad \sigma_b^2 = \frac{R_b}{T_b}; \quad (4.1.35)$$

Таким образом,

$$L_c^2 = k^2 \sigma_0^2 = k^2 \left( \frac{R_t}{T_t} + \frac{R_b}{T_b} \right) = k^2 R_b \frac{T_t + T_b}{T_t \cdot T_b} = k^2 \sigma_b^2 \left( 1 + \frac{T_b}{T_t} \right) \text{ и} \quad (4.1.36)$$

$$L_c = k \sigma_b \left( 1 + \frac{T_b}{T_t} \right)^{1/2} = k \left[ \frac{R_b}{T_b} \left( 1 + \frac{T_b}{T_t} \right) \right]^{1/2}, \quad (4.1.37)$$

где  $T_t$  и  $T_b$  – время измерения пробы и фона соответственно.

При  $T_t = T_b = T$

<sup>16</sup> Значения  $k$  приведены в ГОСТ 8.207-76

$$L_c = k \left( \frac{2R_b}{T} \right)^{1/2} \quad (4.1.38)$$

При  $k = 1,65$

$$L_c = 2,33 \left( \frac{R_b}{T} \right)^{1/2} = 2,33 \sigma_b \quad (4.1.39)$$

При времени измерения  $T = 3600c$ ,  $L_c \approx 0,04 \sqrt{R_b}$ .

Таким образом, критический уровень применяют для качественного анализа, то есть для проверки превышения полезным сигналом заданного уровня флуктуации фона. При этом активность интересующего радионуклида может быть обнаружена только в 50 % случаев, когда чистая скорость счета превышает критический уровень.

*Предел детектирования  $L_d$*

Предел детектирования (Detection Limit) используется для того, чтобы в случае его превышения чистой скоростью счета, гарантировать обнаружение радионуклида в пробе с доверительной вероятностью не ниже 0,95. На рис. 4.1.3 показана связь предела детектирования с критическим уровнем, который можно представить выражением:

$$L_d = L_c + k \cdot \sigma_d, \quad (4.1.40)$$

где  $k$  – односторонний коэффициент, определяющий уровень доверительной вероятности для чистой скорости счета;

$\sigma_d$  – стандартная неопределенность чистой скорости счета  $L_d$ .

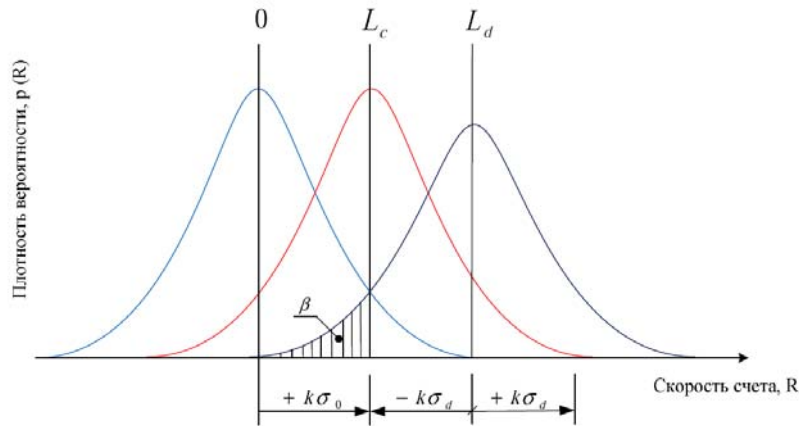


Рис. 4.1.3. Предел детектирования

Поскольку  $L_d = R_d = R_t - R_b$ , то

$$\sigma_d^2 = \sigma_t^2 + \sigma_b^2; \quad \sigma_d = \frac{R_t}{T_t} + \frac{R_b}{T_b} = \frac{R_d + R_b}{T_t} + \frac{R_b}{T_b} = \frac{L_d}{T_t} + \frac{R_b(T_t + T_b)}{T_t \cdot T_b} \quad (4.1.41)$$

$$L_d = L_c + k \left[ \frac{L_d}{T_t} + \sigma_b^2 \left( 1 + \frac{T_b}{T_t} \right) \right]^{1/2}, \text{ следовательно}$$

$$(L_d - L_c)^2 = k^2 \left[ \frac{L_d}{T_t} + \sigma_b^2 \left( 1 + \frac{T_b}{T_t} \right) \right], \quad (4.1.42)$$

$$L_d^2 - 2L_d \cdot L_c + L_c^2 = k^2 \frac{L_d}{T_t} + k^2 \sigma_b^2 \left( 1 + \frac{T_b}{T_t} \right) = k^2 \frac{L_d}{T_t} + L_c^2, \quad (4.1.43)$$

$$L_d - 2L_c = k^2 \frac{1}{T_t}, \quad (4.1.44)$$

$$L_d = \frac{k^2}{T_t} + 2L_c, \quad (4.1.45)$$

$$L_d = \frac{k^2}{T_t} + 2k\sigma_b \left(1 + \frac{T_b}{T_t}\right)^{1/2}, \quad (4.1.46)$$

$$L_d = \frac{k^2}{T_t} + 2k \left[ \frac{R_b}{T_b} \left(1 + \frac{T_b}{T_t}\right) \right]^{1/2}. \quad (4.1.47)$$

При  $T_t = T_b = T$

$$L_d = \frac{k^2}{T} + 2k \left(2 \frac{R_b}{T}\right)^{1/2} \quad (4.1.48)$$

При  $k = 1,65$

$$L_d = \frac{2,72}{T} + 4,66 \left(\frac{R_b}{T}\right)^{1/2}. \quad (4.1.49)$$

Следует заметить, что даже если  $\sigma_b = 0$ , то есть при  $R_b = 0$ , предел детектирования  $L_d$  имеет ненулевое значение.

Первым членом в правой части выражения 4.1.49 можно пренебречь и в упрощенном виде записать выражение для предела детектирования, которое в литературе известно под названием нижний предел детектирования LLD (Lower Limit of Detection).

$$L_d = 4,66 \left(\frac{R_b}{T}\right)^{1/2} = 4,66\sigma_b. \quad (4.1.50)$$

При  $T = 3600c$ ,  $L_d \approx 0,08\sqrt{R_b}$ .

Уровень не больше  $L_{1-t}$

Ранее были рассмотрены критический уровень для ответа на вопрос, имеется ли статистическое отличие измеренной чистой скорости счета от фона, и определили предел детектирования, который нужно превзойти, чтобы гарантировать с вероятностью 0,95 наличие радионуклида в пробе. Однако ничего не было сказано о количестве радиоактивного вещества, которое могло бы присутствовать в пробе, но в результате измерений осталось необнаруженным. Другими словами, измеренная скорость счета оказалась меньше критического уровня  $L_c$ . Уровень не больше  $L_{1-t}$  (Less-Than Level) определяется как максимальная чистая скорость счета импульсов детектора, которую мог бы создать радионуклид, находящийся в пробе, если измеренная скорость счета  $R_s$ , оказалась меньше критического уровня.

Математическое выражение для  $L_{1-t}$  выглядит следующим образом:

$$L_{1-t} = R_s + k\sigma_s. \quad (4.1.51)$$

В отдельном случае, когда измеряется нулевая проба, то есть когда чистая скорость счета равна нулю,  $L_{1-t} = k\sigma_0 = L_c$ .

В общем случае  $L_{1-t}$  находится где-то между значениями  $L_c$  и  $L_d$ . Заметим, что из-за статистической природы регистрируемых событий, возможен вариант, когда  $R_s < 0$ . При этом  $L_{1-t}$  – будет меньше  $L_c$ , а при достаточно большом отрицательном значении  $R_s$ , может стать даже меньше нуля.



В выражении скоростей счета

$$L_{1-t} = R_s + k \left( \frac{R_t}{T_t} + \frac{R_b}{T_b} \right)^{1/2}, \quad (4.1.52)$$

если  $T_t = T_b = T$ , то можно записать практическое выражение для  $L_{1-t}$

$$L_{1-t} = R_s + k \left( \frac{R_t + R_b}{T} \right)^{1/2}. \quad (4.1.53)$$

*Предел количественного определения  $L_q$*

В соответствии с описываемой концепцией в литературных источниках МДА определяется наименьшей чистой скоростью счета, обусловленной присутствием радионуклида в пробе, которая может быть измерена с установленной пользователем относительной статистической неопределенностью (статистической составляющей погрешности измерения). Такой подход к МДА можно назвать пределом количественного определения (Determination Limit) и представить формульно как:

$$L_q = f_q k \sigma_q, \quad (4.1.54)$$

где  $k$  – двухсторонний доверительный коэффициент, приводящий результат измерения к определенной доверительной вероятности;

$f_q$  – величина, обратная относительной статистической неопределенности  $\sigma_{st}$ , которую пользователь программы устанавливает по своему усмотрению.

Наличие данного коэффициента позволяет при анализе спектра гамма-излучения регулировать чувствительность к поиску пиков полного поглощения (см. раздел 4.2.5). Пики полного поглощения отдельных радионуклидов, для которых статистическая неопределенность выше установленной пользователем величины, в расчете активности не участвуют, и для данных радионуклидов рассчитывается МДА.

Ниже представлен вывод формулы для предела количественного определения  $L_q$ :

$$L_q = f_q k \sigma_q = f_q k \left( \frac{R_q + R_b}{T_t} + \frac{R_b}{T_b} \right)^{1/2}, \quad (4.1.55)$$

Поскольку  $R_q = L_q$ , то

$$L_q = f_q k \left[ \frac{L_q}{T_t} + \frac{R_b(T_t + T_b)}{T_t \cdot T_b} \right]^{1/2}, \quad (4.1.56)$$

$$L_q = f_q k \left[ \frac{L_q}{T_t} + \sigma_b^2 \left( 1 + \frac{T_b}{T_t} \right) \right]^{1/2}. \quad (4.1.57)$$

Решая уравнение 4.1.57 относительно  $L_q$ , имеем:

$$L_q = \frac{k^2 f_q^2}{2T_t} \left\{ 1 + \left[ 1 + \frac{4T_t \sigma_b^2 (T_t + T_b)}{k^2 f_q^2} \right]^{1/2} \right\}, \quad (4.1.58)$$

Или в выражении скорости счёта:

$$L_q = \frac{k^2 f_q^2}{2T_t} \left\{ 1 + \left[ 1 + \frac{4T_t R_b (T_t + T_b)}{k^2 f_q^2 T_b} \right]^{1/2} \right\}. \quad (4.1.59)$$

На практике  $T_t = T_b = T$ , поэтому выражение 4.1.59 приобретает вид:

$$L_q = \frac{k^2 f_q^2}{2T_i} \left\{ 1 + \left[ 1 + \frac{8R_b T}{k^2 f_q^2} \right]^{1/2} \right\}. \quad (4.1.60)$$

Если выбрать  $k = 2$ , что соответствует доверительной вероятности 0,95, и задаться  $f_q = 2$  (это соответствует значению относительной статистической неопределенности, равному 0,5), а также пренебречь единицами в правой части выражения 4.1.60, то будет получено упрощенное выражение для предела количественного определения:

$$L_q = 4 \left( \frac{2R_b}{T} \right)^{1/2} \approx 5,66 \left( \frac{R_b}{T} \right)^{1/2} = 5,66 \sigma_b. \quad (4.1.61)$$

При  $T = 3600c$ ,  $L_d \approx 0,1 \sqrt{R_b}$

### **Определения МДА**

В практической спектрометрии ионизирующих излучений, для оценки нижнего предела измеряемой активности, используют следующие величины:

*1. Минимальная измеряемая активность (МИА)* – это наименьшая активность радионуклида в измеряемой пробе (объекте), которую на данной установке, с помощью данного метода анализа аппаратного спектра энергий излучения, можно определить за установленное время так, чтобы статистическая неопределенность чистой скорости счета в установленном доверительном интервале (обычно 95 %) не превышала заданного значения. Систематическую погрешность МИА, как правило, не учитывает. В зависимости от условий и параметров измерения, МИА представляет собой, по существу, нижнюю динамическую границу диапазона измерения активности, для которой должны выполняться требования к допускаемой погрешности измерения. Значение МИА на пробу для данного радионуклида в условиях постоянного фона при доверительной вероятности  $P = 0,95$  рассчитывается по формуле:

$$МИА(Бк) = \frac{3 \left( \frac{R_b}{T} \right)^{1/2}}{\varepsilon \cdot Y \cdot \sigma_{st}}, \quad (4.1.62)$$

где  $\varepsilon$  – абсолютная эффективность регистрации для данного радионуклида в выбранной геометрии измерения (см. раздел 4.2);

$Y$  – выход данного вида излучения при каждом акте распада интересующего радионуклида;

$\sigma_{st} = 1/f_q$  – заданная пользователем относительная статистическая неопределенность чистой скорости счета для данного радионуклида.

Расчет МИА обычно выполняют из фонового спектра для оценки чувствительности спектрометрической установки, поэтому такую характеристику можно отнести к задаче определения низких активностей на слабом фоне.

*2. Нижний предел детектирования LLD (Lower Limit of Detection)* – это наименьшая активность одного радионуклида в пробе, создающая в детекторе такую чистую скорость счета, которая позволяет определить активность данного радионуклида с доверительной вероятностью 0,95. Формула для вычисления LLD следующая:

$$LLD(Бк) = \frac{L_d}{\varepsilon \cdot Y} \text{ или} \\ LLD(Бк) = \frac{4,66 \sqrt{\frac{R_b}{T}}}{\varepsilon \cdot Y}. \quad (4.1.63)$$

Величина LLD должна указываться для тех радиометрических установок, с помощью которых выполняется контроль непревышения допустимых уровней содержания радионуклидов в объектах окружающей среды и продуктах питания.

Значение нижнего предела детектирования находят путем статистического анализа энергетического спектра фоновой пробы, поэтому LLD так же, как и МИА, относится к задаче определения низких активностей на слабом фоне.

3. *Минимальная детектируемая активность MDA* (Minimum Detectable Activity) – это максимальная активность данного радионуклида, который мог бы присутствовать в пробе, но в результате анализа спектра этой пробы при заданных параметрах анализа остался необнаруженным. Значение MDA определяется «мешающим» фоновым пьедесталом (включая комптоновский фон; см. раздел 4.2.5) в энергетическом интервале или зоне пика интересующего радионуклида и коэффициентами, устанавливающими доверительную вероятность и статистическую неопределенность полезного сигнала. Расчет MDA можно выполнить из спектра пробы с любой суммарной активностью, поэтому такая характеристика полезна при определении низких активностей на слабом и сильном фоне. В выходных протоколах MDA всегда сопровождается значком < (меньше). Формула для расчета MDA имеет вид:

$$MDA(Бк) = \frac{k \cdot f_q}{\varepsilon \cdot Y \cdot T} \left[ \left( 2R_b \cdot T + \frac{f_q^2}{4} \right)^{1/2} + \frac{f_q}{2} \right], \quad (4.1.64)$$

где  $k$  – коэффициент, устанавливающий доверительную вероятность ( $k=2$  для  $P=0,95$ ). После некоторого, допустимого на практике, упрощения и принимая  $k=2$ , а также  $f_q=2$  ( $\sigma_{st}=0,5$ ), формула 4.1.64 может быть переписана в виде:

$$MDA \approx \frac{4\sqrt{2}}{\varepsilon \cdot Y} \sqrt{\frac{R_b}{T}}. \quad (4.1.65)$$

Все рассмотренные характеристики чувствительности радиометрических установок, позволяющие оценить их пригодность к измерению малых активностей, полезны для применения в практике радиометрии, поскольку каждая из них выполняет вполне определенную роль.

Минимальная измеряемая активность МИА означает наименьшую активность радионуклида в пробе, которая может быть измерена на данной спектрометрической установке за установленное время с заданной статистической погрешностью при доверительной вероятности 0,95. Вводимое значение случайной погрешности должно быть меньше предела допустимой погрешности измерения на данной установке, поскольку последняя дополнительно включает в себя погрешность градуировки и другие источники погрешности.

Нижний предел детектирования LLD определяется минимальной активностью, которая может быть обнаружена с доверительной вероятностью 0,95 при добавлении в пробу только одного интересующего радионуклида. Пользователь, выполняющий измерения на радиометрической установке, должен быть уверен, что полученные в результате анализа значения LLD будут ниже допустимых уровней, указанных в регулирующих документах.

Минимальная детектируемая активность MDA зависит от фоновой подставки в зоне интересующего радионуклида и от вводимой пользователем относительной статистической погрешности для расчета максимальной активности радионуклида, который мог бы присутствовать в пробе, но остался необнаруженным.

Для одной и той же радиометрической установки и одинаковой геометрии измерения при анализе спектров, приближающихся к фоновому, MDA, LLD и МИА будут иметь разные значения, поскольку подходы и формулы для их расчета отличаются.

Если для определения содержания какого-либо радионуклида в пробе используют несколько принадлежащих ему пиков полного поглощения (активность определяется как средневзвешенная величина), то расчет MDA для данного радионуклида выполняют только для одной гамма-линии с наилучшими показателями, такими как: наибольший квантовый выход, высокая эффективность регистрации, наименьший вклад фона, надежная изолированность от мешающих линий и так далее.

## NS4.2 ДЕТЕКТОРЫ ИОНИЗИРУЮЩИХ ИЗЛУЧЕНИЙ

Существует большое разнообразие детекторов ионизирующего излучения (ИИ) отличающихся по самым разнообразным признакам (см. рис. 4.2.1). В соответствии с этими признаками детекторы классифицируют на разные классы. Наиболее универсальными и общепринятыми являются классификации по скорости получения и обработки информации, а также по принципу действия (детектирования).

По скорости получения и обработки информации все детекторы делят на 2 класса:

1. детекторы немедленного действия;
2. детекторы замедленного (продолженного) действия.

Первый класс детекторов характеризуется практически мгновенным получением и обработкой сигналов в виде импульсов электрического тока или напряжения на выходе. Полученные импульсы можно формировать, усиливать, передавать на большие расстояния без искажений, анализировать с целью получения полезных данных, представлять в удобной для исследования форме, то есть в виде таблиц, графиков, и так далее. Современные электронные средства позволяют эффективно и оперативно обрабатывать сигнал для получения нужной информации в реальном масштабе времени.

Второй класс детекторов имеет существенную задержку при получении и обработке информации об измеряемых характеристиках поля ионизирующего излучения. К этому классу относятся детекторы прямого заряда и разряда; термо-, фото- хемо- и другие люминесцентные детекторы продолженного действия; трековые детекторы и другие. Воздействие ионизирующего излучения на них приводит к изменениям, которые регистрируются не во время, а после облучения.

Как первый, так и второй класс имеют свои преимущества, недостатки и достаточно часто используются при измерениях полей ионизирующих излучений. Тем не менее, все детекторы, рассматриваемые в данной главе относятся к классу мгновенных, за исключением сцинтилляционных, которые могут быть как мгновенными, так и запаздывающими.

По принципу действия детекторы подразделяются на газовые счетчики, сцинтилляционные детекторы, полупроводниковые детекторы, трековые, активационные и некоторые другие менее распространенные типы. В данной главе описываются основные принципы работы и характеристики газовых счетчиков, сцинтилляционных и полупроводниковых детекторов, составляющих основу современной лабораторной базы для измерения полей ионизирующих излучений.

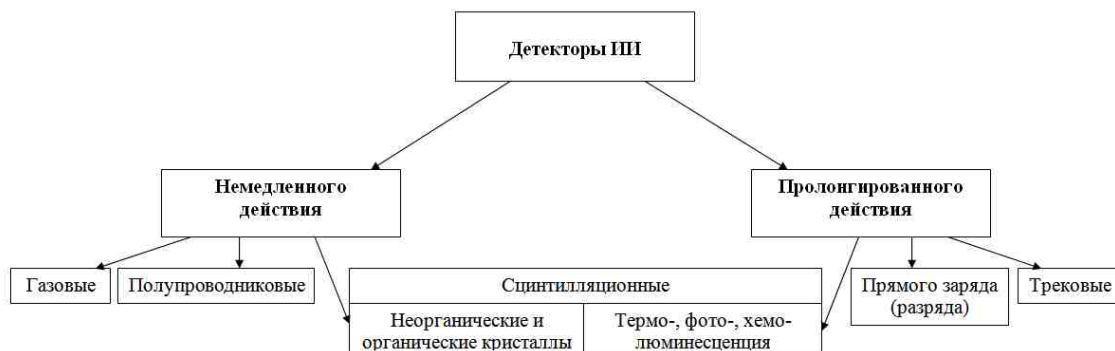


Рис. 4.2.1. Основные типы детекторы ионизирующего излучения

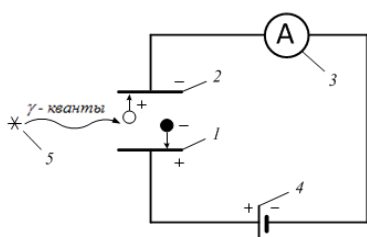
### NS4.2.1 Ионизационные камеры

Ионизационные камеры, как и пропорциональные счетчики, а также счетчики Гейгера-Мюллера относятся к разряду газовых детекторов ионизирующих излучений. Конструкция всех газовых детекторов, принципы их работы, а также состав измерительных систем, в составе которых они функционируют, являются схожими и могут быть рассмотрены на примере ионизационных камер.

Под действием любого ионизирующего излучения в веществе (газе) из нейтральных атомов или молекул образуются ионы, несущие положительные или отрицательные электрические заряды. Положительные ионы возникают в результате отрыва от атома, молекулы или группы молекул одного или нескольких внешних электронов. Такие электроны в зависимости от рода газа либо остаются свободными, либо присоединяются к нейтральным частицам газа, образуя отрицательные ионы. В обычных условиях образовавшиеся ионы существуют недолго, они рекомбинируют, то есть вновь соединяются в нейтральные атомы и молекулы.

Газ имеет ряд преимуществ по отношению к другим средам для детектирования. Подвижность ионов в нем является наиболее высокой. В электрическом поле ионы газа довольно быстро перемещаются к соответствующим электродам, вследствие чего их рекомбинация незначительна. Однако концентрация ядер газа, а как следствие степень взаимодействия ионизирующих излучений с веществом, для них намного меньше, чем для конденсированных сред. Поэтому при работе с различными радиоактивными источниками приходится измерять силу ионизационного тока от  $10^{-16}$  до  $10^{-11}$  А. Такие незначительные по величине токи измерить даже самыми чувствительными гальванометрами не представляется возможным. Ионизационные токи менее  $10^{-11}$  А измеряются методом зарядки или разрядки известной емкости; методом компенсации и методом постоянного отклонения. Указанные методы измерений не относятся к мгновенным, а область их применения обычно ограничивается индивидуальной дозиметрией. Их практическое значение для анализа ядерных и радиоактивных материалов невелико. Поэтому они, также как и некоторые другие методы измерений ионизирующего излучения, не рассматриваются в рамках данного учебного пособия. Однако перечень использованной для подготовки пособия литературы содержит источники, в которых необходима информация о данных методах приводится.

По своей конструкции и схеме включения в измерительную цепь любой газовый счетчик напоминает работу конденсатора (см. рис.4.2.2).



1. Анод
2. Катод
3. Гальвнометр
4. Источник напряжения смещения
5. Источник ионизирующего излучения

Рис. 4.2.2. Схема включения газового счетчика

Конденсатор детектора состоит из электродов, между которыми находится газ. Чаще всего в ионизационных камерах используется один из инертных газов (гелий, аргон, ксенон, криптон), а также водород, при повышенном или пониженном давлении (в зависимости от решаемой задачи). Конструктивно корпус ионизационной камеры может быть выполнен в форме плоского конденсатора, в виде цилиндра или сферы. К обкладкам конденсатора прикладывают напряжение для того, чтобы в рабочей области детектора напряженность электрического поля была величиной в несколько сотен Вольт/см. Если в рабочую область попадает ионизирующая частица, то вдоль пути ее движения образуются пары ионов обоих знаков. Электрическое поле обеспечивает дрейф зарядов к противоположным по знаку заряда электродам камеры. Достигая поверхности электродов, заряды вызывают во внешней замкнутой цепи компенсационный электрический ток. Последовательно в эту цепь включают измеритель тока, или параллельно включают интегрирующую  $RC$  цепь, на которой измеряют падение напряжения. Форма электрического импульса по переднему фронту зависит от времени сбора ионов на электродах камеры, а по заднему фронту – от постоянной времени интегрирования ( $\tau = RC$ ) цепи. Обычно длительность импульса на выходе ионизационной камеры находится в пределах от 1 мкс до десятков мкс, а быстродействие не превышает 1 МГц. Амплитуда импульса напряжения составляет от десятков до сотен мкВ, поэтому для усиления

таких сигналов и передачи их на расстояние требуются электронные усиливающие и согласующие устройства с высокими коэффициентами усиления по напряжению и по мощности.

В показанном на рис. 4.2.2 режиме включения можно измерить заряд или ионизационный ток, созданный в камере отдельной ионизирующей частицей. Импульс тока пропорционален числу пар ионов, созданных в объеме камеры первичной частицей и, следовательно, потерянной ею энергии, при условии, что полный пробег частицы полностью укладывается в рабочем объеме камеры. Таким образом, с помощью импульсной камеры можно исследовать не только распределение регистрируемых частиц во времени, но и исследовать их распределение по энергиям.

Форма импульса и его длительность в ионизационной камере определяются постоянной времени  $RC$ , скоростями дрейфа электронов и ионов. Из-за конечной скорости дрейфа и, следовательно, конечной величины времени сбора носителей зарядов на электродах, длительность импульса не может быть меньше этого времени. Это означает, что камера может регистрировать частицы как отдельные события только в том случае, если временные интервалы между ними будут больше, чем время сбора носителей.

Ионизационную камеру можно использовать и в интегральном режиме работы. В этом случае камеру включают во внешнюю цепь с высоким значением постоянной времени интегрирования. Усредненный во времени заряд, накопленный на выходной емкости камеры, служит основой для определения мощности поглощенной дозы или интегральной поглощенной дозы излучения за конечный временной промежуток в заданной точке пространства.

Каждый тип газовых детекторов характеризуется своим режимом работы. Режимы имеют принципиальные различия с точки зрения физики образования и сбора образующихся в рабочем объеме датчиков зарядов. Эти физические различия обусловлены отличиями в диапазонах рабочих напряжений датчиков. Если приложенную к цепи разность потенциалов постепенно увеличивать, начиная с нуля, при постоянной интенсивности излучения, то оказывается, что ток в цепи вначале увеличивается пропорционально приложенной разности потенциалов (рис. 4.2.3, область I). Затем его увеличение замедляется до тех пор, пока он не становится постоянным по величине, несмотря на увеличение разности потенциалов (область II). При очень больших разностях потенциалов ток снова возрастает, пока не наступит пробой ионизационной камеры (область III). Таким образом, область II является рабочим диапазоном ионизационной камеры.

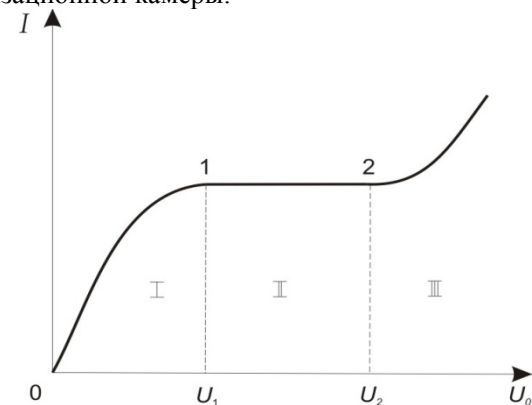


Рис. 4.2.3. Вольтамперная характеристика ионизационной камеры

Полученную зависимость ионизационного тока от напряжения называют вольтамперной характеристикой ионизационной камеры. Физические явления, происходящие в ионизационной камере, можно объяснить следующим образом. Величина ионизационного тока определяется суммарным электрическим зарядом ионов, достигших соответствующих электродов в течение 1 сек. В слабом электрическом поле (область I) только часть образовавшихся ионов может попасть на электроды. Большая же часть ионов с разными

знаками рекомбинируют друг с другом, то есть заряды их нейтрализуются, прежде чем они достигают электродов. В этом случае камера малоэффективна для регистрации излучения.

В более сильном электрическом поле (область II) скорость движения ионов возрастает, а вероятность рекомбинации уменьшается до нуля. При этом все ионы, образующиеся в газе, попадают на электроды. Ионизационный ток возрастает и достигает значения насыщения  $i_{нас}$ . Ионизационные камеры обычно работают в режиме тока насыщения. По току насыщения можно определить интенсивность излучения и вычислить активность радиоактивного вещества.

Ионизацию можно разделить на два вида: объемную и колонную. Объемная ионизация, более или менее равномерная по всему объему газа, происходит под действием рентгеновского, гамма- и бета-излучений при давлении порядка 1 атм. Колонная ионизация происходит при прохождении через газ альфа-частиц и протонов, а также при ионизации рентгеновским, гамма- и бета-излучениями при давлении порядка нескольких сот атмосфер. В этом случае, концентрация ионов вдоль траектории движения частицы излучения велика и образует «колонну», что можно наблюдать, например, в пузырьковой камере.

Уравнение ионного режима или изменение числа пар ионов со временем для ионизационной камеры будет иметь следующий вид;

$$\frac{dn}{dt} = N - \alpha n^2 - \frac{i}{V_i e}, \text{ где} \quad (4.2.1)$$

$N$  - число пар ионов, образующихся каждую секунду в единице объема газа (ионизация);

$n$  - число ионов каждого знака, уже существующих в том же объеме газа;

$e$  - заряд иона;

$i$  - ионизационный ток;

$\alpha$  - коэффициент рекомбинации ионов;

$V_i$  - ионизационный объем газа.

Из каждую секунду образующегося в единице объема числа пар ионов  $N$  часть уходит на рекомбинацию, а другая часть отводится на электроды (диффузия ионов в газе не рассматривается из-за незначительности ее по сравнению с другими процессами), что учитывается соответствующими членами в правой части уравнения (4.2.1)  $\alpha n^2$  и  $i/V_i e$ .

При установившемся режиме  $dn/dt = 0$ ; тогда  $i = V_i e(N - \alpha n^2)$ . Если электрическое поле отсутствует, то  $i = 0$  и  $N = \alpha n^2$ . Отсюда концентрация существующих пар ионов будет иметь максимальное значение  $n = \sqrt{N/\alpha}$ .

С возрастанием разности потенциалов на электродах рекомбинация ионов уменьшается, и сила тока возрастает ( $i > 0$ ). Следовательно,  $N - \alpha n^2 > 0$ , или  $N > \alpha n^2$ . То есть концентрация существующих ионов убывает за счет их отвода на электроды. Когда ионизационный ток будет равен току насыщения  $i = i_{нас}$ , рекомбинация будет равна нулю.

$$\text{Тогда } i = i_{нас} = V_i e N, \quad (4.2.2)$$

то есть ток насыщения  $i_{нас}$  не зависит от разности потенциалов между электродами, а пропорционален объему  $V$ , в котором происходит ионизация, и числу пар ионов, образующихся в единицу времени  $N = P/\varepsilon$  (где  $P$  - мощность экспозиционной дозы).

Зависимость мощности экспозиционной дозы от тока насыщения будет описываться выражением:

$$i_{нас} = V_i e \frac{P}{\varepsilon}. \quad (4.2.3)$$

Так как доза облучения  $D = Pt$ , то, с помощью умножения обеих частей уравнения (4.2.3) на время  $t$ , устанавливается зависимость экспозиционной дозы от заряда:  $i_{нас} t = V_i e D / \varepsilon$ , где  $i_{нас} t = Q$ , ( $Q$  - собираемый на электродах заряд). Таким образом:

$$Q = V_i e \frac{D}{\varepsilon}. \quad (4.2.4)$$

Из соотношений (4.2.3) и (4.2.4) следует, что ток насыщения прямо пропорционален мощности дозы, а заряд - дозе.

Если обозначить емкость ионизационной камеры  $C$ , а потенциал, сообщенный камере,  $U_1$ , то будет справедливым следующее выражение  $Q_1 = C U_1$ . В результате облучения камеры потенциал уменьшится и станет равным  $U_2$ . Потенциалу  $U_2$  соответствует заряд  $Q = C U_2$ . Уменьшение заряда на электродах будет равно:

$$Q_1 - Q_2 = C(U_1 - U_2). \quad (4.2.5)$$

Согласно выражениям (4.2.4) и (4.2.5) измерение экспозиционной дозы облучения может быть выполнено по измерению падения напряжения на электродах камеры. Этот принцип наглядно реализуется в разрядных дозиметрах индивидуального контроля, используемых на ядерных и радиационно-опасных объектах. В этих дозиметрах происходит постепенный разряд газового детектора, носимого на груди сотрудника, в результате воздействия внешнего поля ионизирующего излучения. Результаты разряда, сравниваются с контрольным дозиметром, находящимся вне зоны повышенного облучения.

Для того чтобы создать на основе ионизационной камеры радиометрическое устройство (счетчик) или спектрометр необходимо измерять количество и амплитуду (для спектрометра) скачков напряжения, вызванных фактом регистрации отдельных частиц. При этом потенциал напряжения на детекторе должен восстанавливаться рабочей схемой до прежнего уровня.

Число пар ионов, которое образуется каждую секунду в  $1 \text{ см}^3$  газа, заполняющего ионизационную камеру, пропорционально интенсивности излучения ( $N \approx I$ ). Поэтому для данной ионизационной камеры напряжение насыщения  $U_{\text{нас}}$ , соответствующее степени насыщения, увеличивается с ростом интенсивности излучения  $I$ . При этом (рис. 4.2.4) уменьшается протяженность горизонтального участка, соответствующего току насыщения.

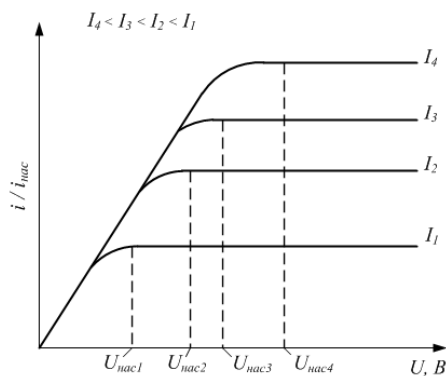


Рис. 4.2.4. Зависимость размера рабочей области вольтамперной характеристики ионизационной камеры от интенсивности источника излучения

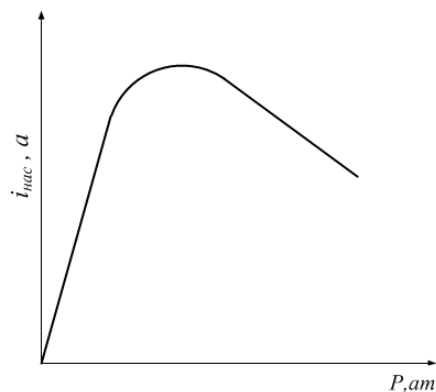


Рис. 4.2.5. Зависимость тока насыщения от давления газа в ионизационной камере

Зависимость тока насыщения от давления газа в ионизационной камере показана на рис. 4.2.5. С увеличением давления газа в камере, при постоянной интенсивности излучения возрастает число пар ионов, образующихся каждую секунду в единице объема газа, за счет увеличения плотности газа. При небольшом увеличении давления наблюдается пропорциональное возрастание тока насыщения. При давлении в несколько десятков атмосфер зависимость ионизации от давления переходит от линейной к степенной, достигая максимального значения. С дальнейшим увеличением давления значение тока насыщения снижается вследствие рекомбинации ионов. Следует отметить, что напряжение, соответствующее току насыщения, с возрастанием давления увеличивается.

Ионизационными камерами можно измерить отношение или разность двух ионизационных токов. Такие камеры называются дифференциальными. Дифференциальная камера состоит из двух ионизационных камер с общим собирающим (центральным) электродом.

По конструктивному оформлению ионизационные камеры можно разделить на три класса.

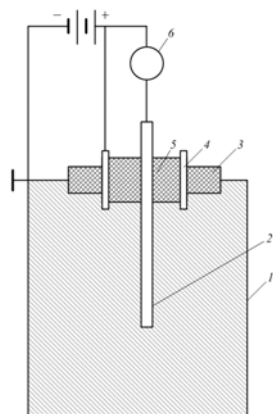
1. Камеры, в измерительном объеме которых ионизация возникает за счет частиц от источника, расположенного внутри самой камеры, называются камерами с внутренним расположением источника. Их используют для измерения ионизации от альфа-частиц или нейтронов.



2. Камеры, в измерительном объеме которых ионизация производится в меньшей степени частицами, возникающими в измерительном объеме, и в большей степени частицами, выбитыми из стенок камеры, называются стеночными. Малые стеночные камеры известны под названием наперстковых. Они применяются для измерения ионизации от гамма-, бета- и нейтронных потоков ионизирующего излучения.

3. Камеры, в измерительном объеме которых ионизация создается не только частицами, образующимися в измерительном объеме, но и частицами, поступающими в измерительную среду из окружающего газа, называются камерами со свободным газом, а иногда диафрагмовыми или нормальными камерами. Они служат для абсолютных измерений дозы рентгеновского и гамма-излучений в рентгенах.

Из весьма разнообразных форм стеночных камер наиболее часто встречаются цилиндрические (рис. 2.4.6), которые применяются главным образом для измерения гамма-излучения.



1. Катод (цилиндрический корпус камеры)
2. Собирающий анод
3. Изолятор
4. Охранное кольцо
5. Изолятор
6. Потенциометр

Рис. 4.2.6. Конструкция цилиндрической ионизационной камеры с цепью питания

Цилиндрическая ионизационная камера состоит из основного цилиндрического электрода 1 и центрального электрода 2, закрепленного на изоляторах 3 и 5 по оси цилиндра. Центральный электрод является собирающим; на него подается высокое напряжение со знаком плюс, а цилиндрический электрод заземляется. Цилиндрический электрод, являющийся стенками ионизационной камеры, выполняется из воздухозквивалентного материала (бакелит, плексиглас и тому подобное), чтобы избежать хода с жесткостью. **Ходом с жесткостью** принято называть зависимость чувствительности ионизационной камеры ( $i_n / P_g$  - отношение тока насыщения к мощности дозы в воздухе) от энергии гамма-квантов. Центральный электрод изготавливается из токопроводящего материала (медь, графит и другие). Изоляторы выполняются из материалов с большим электрическим сопротивлением (изолятор 5 – из янтаря, полистирола, изолятор 3 – из текстолита, гетинакса).

В результате взаимодействия первичного гамма-излучения с ионизационной камерой вторичные электроны образуются: в стенках камеры; в наполняющем ее газе; в среде, окружающей камеру (если стенки камеры очень тонки). Кроме того, некоторая часть электронов образуется вторичным рассеянным гамма-излучением. Определить долю ионизации от каждой группы вторичных электронов практически невозможно, так как это распределение зависит от многих факторов: материала и толщины стенки камеры, ее формы, давления, температуры и природы наполняющего газа, спектрального состава излучения. Поэтому определить величину ионизации в камере расчетным путем достаточно сложно. Применяющиеся на практике ионизационные камеры можно рассчитать только при определенных условиях и с известными ограничениями. Наиболее часто используемым для расчетов упрощением является использование теории Грея.

К недостаткам как импульсных, так и интегральных ионизационных камер относят:

- слабый сигнал при значительном уровне фона;
- низкую плотность газового наполнения рабочего объема камеры, вследствие чего ее **эффективность**<sup>17</sup> мала при регистрации излучений с высокой проникающей способностью (нейтронов, фотонов);
- относительно высокие энергозатраты на производство одной пары ионов (например, 34 эВ для воздуха), в связи с чем количество пар ионов, в расчете на единицу поглощенной в камере энергии частицы, мало.

Тем не менее, ионизационные камеры остаются одним из самых распространенных типов детекторов ионизирующих излучений. Более того, некоторые из перечисленных недостатков, а именно, низкая эффективность регистрации, способствуют этому. Например, благодаря низкой эффективности регистрации, ионизационные камеры могут быть использованы для измерений в интенсивных потоках излучения. Источником таких потоков являются ядерные реакторы, а ионизационные камеры используются в них в качестве датчиков внутризонного контроля.

#### NS4.2.2 Пропорциональные счетчики

Пропорциональные счетчики (рис. 4.2.7) относятся к группе газоразрядных детекторов. Такое название было присвоено им потому, что электрический сигнал на выходе счетчика по амплитуде пропорционален энергии, потерянной регистрируемой частицей в рабочем объеме, при условии, что пробег частицы полностью в нем укладывается. С помощью пропорционального счетчика можно измерять энергетические спектры полей ионизирующих излучений. Пропорциональные счетчики конструктивно не отличаются от цилиндрических ионизационных камер, но их газовое наполнение (обычно 90% аргона и 10% метана) и режим работы – различны.

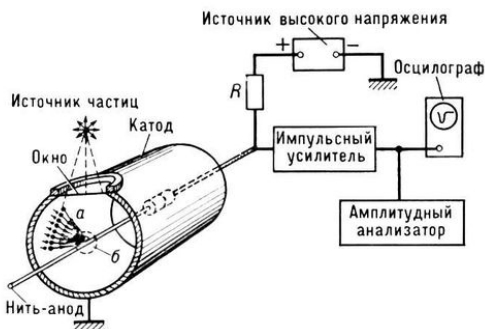


Рис. 4.2.7. Схема работы цилиндрического пропорционального счетчика

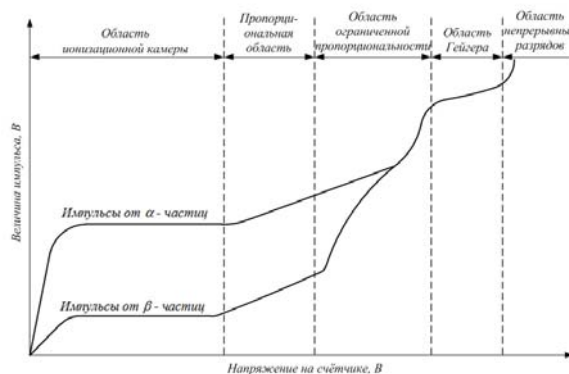


Рис. 4.2.8. Зависимость величина импульса от напряжения на газовом детекторе

Ионизационные камеры удобны для регистрации суммарного ионизационного эффекта, вызванного излучением сравнительно большой интенсивности и небольшим пробегом в газовом наполнении (например, альфа-частиц). Использование их для регистрации отдельных электронов, или фотонов электромагнитного излучения, сопряжено с решением ряда проблем, связанных с улучшением параметров электронной аппаратуры, поскольку амплитуды импульсов сопоставимы по величине с шумами электронной аппаратуры. Для увеличения амплитуды импульса используют газовое усиление ионизационного тока. Пропорциональный счетчик, в отличие от импульсной ионизационной камеры, работает при более высоком напряжении на электродах, то есть в той области вольтамперной характеристики, в которой вблизи поверхности тонкого анодного электрода возникают условия для начала вторичной ионизации (рис. 4.2.8). Счетчик часто выполняется в коаксиальной цилиндрической геометрии (рис. 4.2.7). Анод изготавливается в виде тонкой металлической нити (0,1 мм), натянутой

<sup>17</sup> **Эффективностью** детектирования называется выраженное в процентах отношение числа регистрируемых частиц к числу всех частиц, попавших в рабочий объем детектора.

строго по оси цилиндрического корпуса. Объем счетчика наполняется инертным газом с добавкой многоатомных газов. Давление газа выбирается близким к атмосферному или немного большим. На анод подается положительное напряжение  $U_0$  несколько сотен Вольт относительно катода. В объеме счетчика возникает неоднородное электрическое поле, напряженность которого изменяется по мере приближения к аноду по закону  $1/r$ , где  $r$  – текущее значение радиуса в объеме счетчика. Гиперболическое изменение напряженности поля приводит к ускорению электронов по направлению к аноду. Вблизи поверхности анода электроны ускоряются до таких энергий, что приобретают способность производить вторичную ударную ионизацию рабочего газа. Процесс размножения ионов при вторичной ионизации ограничен несколькими поколениями, но не развивается в неуправляемую лавину. Разряд прекращается, как только прекращается первичная ионизация. Газовый разряд такого сорта называют несамостоятельным, то есть способным прекратиться без дополнительного на него воздействия. Если число пар ионов, созданных влетевшей в рабочее тело счетчика регистрируемой частицей, равно  $n$ , то число пар ионов, рожденных вторичной, ударной ионизацией будет равно  $K \cdot n$ . Величину  $K$  называется **коэффициентом газового усиления**. Если  $K$  не зависит от числа образованных в первичной ионизации пар ионов, то область вольтамперной характеристики называется пропорциональной. Таким образом:  $K = \frac{i}{i_0}$ , где  $i_0$

– ток, созданный первичной ионизацией,  $i$  – ток на выходе счетчика. Можно определить коэффициент газового усиления через число пар ионов, имевшихся в объеме счетчика во время формирования сигнала.  $K = \frac{n}{n_0}$ , где  $n_0$  – число пар ионов, созданных ионизирующей частицей;  $n$  – общее число пар ионов.

Для датчика цилиндрической формы уравнение газового усиления в простейшем приближении имеет вид:

$$K = \exp(CU_0 e^{\frac{D}{U_0}}), \quad (4.2.6)$$

$$\text{где } C = \frac{A}{B \ln \frac{r_k}{r_a}};$$

$$D = r_a B p \ln \frac{r_k}{r_a};$$

где  $r_k$  и  $r_a$  – радиусы катода и анода;

$A$  и  $B$  – постоянные величины, зависящие от свойств газа, наполняющего детектор;

$U_0$  – напряжение питания на счетчике.

Таким образом, коэффициент газового усиления зависит от напряжения питания, а также от геометрических размеров счетчика, сорта и давления газа в нем. Пренебрежение размножением электронной лавины за счет фотонного механизма может быть оправдано только при небольших коэффициентах газового усиления ( $K = 100$  или немногим более). Увеличение  $K$  до 1000 и более включает фотонный механизм. Коэффициент газового усиления может возрастать за счет фотонного механизма быстрее, чем по экспоненциальному закону вплоть до возникновения самостоятельного газового разряда.

Коэффициент газового усиления зависит от места первичной ионизации в объеме счетчика, практически – от траектории прохождения частицы через объем в том случае, когда в рабочем газе счетчика присутствует кислород. Кислород является электроотрицательным газом. При образовании большого количества свободных электронов атом кислорода присоединяет электрон и возникает тяжелый отрицательно заряженный ион. Подвижность этих ионов на несколько порядков меньше, чем у электронов. Кроме того, попадая в сильное электрическое поле, такой ион не может производить ударную ионизацию рабочего газа.

Поэтому амплитуда импульса тока, при всех равных условиях, в присутствии электроотрицательных газов существенно меньше. Экспериментальная оценка коэффициента газового усиления, связанного с отрицательными ионами, показала, что оно меньше усиления, произведенного свободными электронами примерно в семь раз. Все это приводит к тому, что наличия отрицательных ионов в газе датчика, в частности кислорода, всячески пытаются избежать. В частности, практически в любом газе присутствуют пары воды, поэтому перед наполнением счетчика газ предварительно осушают. К газам, не образующим отрицательных ионов относятся аргон, ксенон, криптон, неон, гелий. Слабо связанные отрицательные ионы образуют азот и водород. Используемые в качестве гасящих добавок газообразные легкие углеводороды также не образуют отрицательные ионы.

Область применения пропорциональных счетчиков достаточно обширна, что определяется их свойствами. Эффективность регистрации ими альфа-частиц, осколков деления, протонов, и мягкого гамма- и рентгеновского излучения (с энергией до 10–20 кэВ) близка к 100 %. Для таких измерений (особенно для измерений заряженных частиц) используют датчики с окнами из тонкой слюды или органических пленок. Иногда источник излучения помещается внутри объёма. Пропорциональные счетчики активно используются для исследования поверхностей на загрязнения (рис. 4.2.9, 4.2.10), включая системы мониторинга загрязнения поверхности тела, одежды, обуви и так далее. Для регистрации нейтронов пропорциональные счетчики заполняются  $^3\text{He}$  или  $^{10}\text{BF}_3$  (см. раздел 4.3).

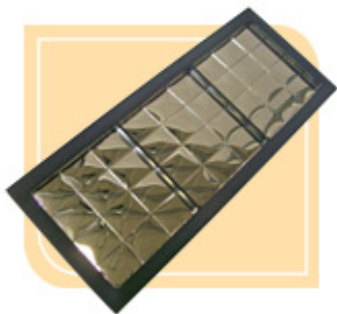


Рис. 4.2.9. Пропорциональный детектор серии РС-366Р большой площади для мониторинга загрязнения поверхностей



Рис. 4.2.10. Система мониторинга поверхностного загрязнения одежды и тела (LFP-180 - Low Flow Gas Proportional Detector) на основе пропорциональных счетчиков бета- и альфа-излучения

Использование пропорциональных счетчиков для спектрометрии ограничено. В большинстве случаев системы на их основе уступают полупроводниковым и сцинтилляционным. Однако надёжность и простота дают возможность применять их, если не требуется высоко-энергетическое разрешение, для работы в области энергий  $\sim 0,2$  кэВ, где полупроводниковый детектор неприменим. По сравнению со сцинтилляционным детектором пропорциональные счетчики имеют лучшее энергетическое разрешение, меньшие шумы, нечувствительны к магнитному полю. Они работают в диапазоне температур от 10 до 103 К. Пропорциональные счетчики применялись при изучении бета-распада ядер (оценки массы антинейтрино), исследованиях тонкой структуры  $\alpha$ -спектра, изомерных состояний ядер, при обнаружении захвата ядром  $L$ -электрона, исследованиях слабых конверсионных пиков и в других случаях. Они используются также в астрофизике, археологии, геологии, медицине и так далее. Некоторое промышленное применение основано на зависимости лавинного разряда от напряжённости поля у анода и чистоты наполняющего газа (контроль диаметра и качества поверхности микроприводов, газоанализатор в газовой хроматографии и так далее). С помощью установленного на космическом беспилотном аппарате «Луноход-1» пропорционального счетчика, регистрирующего рентгеновскую флюоресценцию, производился элементный анализ вещества поверхности Луны.

### NS4.2.3 Счетчики Гейгера-Мюллера

Счетчик был изобретен и испытан в 1908 году немецким физиком Х. Гейгером совместно с англичанином Э. Резерфордом. В дальнейшем он был усовершенствован Гейгером совместно с другим немецким физиком – В. Мюллером. В честь своих создателей счетчик получил название Гейгера-Мюллера. Рабочий диапазон напряжений счетчика (см. рис. 4.2.8) находится в области самостоятельного разряда, при котором в процесс образования вторичных лавин электронов полностью вовлечены все механизмы их образования, описанные в разделе 4.2.2. Конструктивно счетчик Гейгера-Мюллера мало отличается от других цилиндрических газовых счетчиков. Обычно он представляет собой коаксиальный цилиндр диаметром 2–40 мм, который одновременно служит катодом. Рис. 4.2.11. Для измерения числа гамма-квантов применяются стеклянные счетчики. Они изготавливаются в виде стеклянной трубки, внутренняя поверхность которой покрыта тонким проводящим слоем (медь, графит и др.), являющейся катодом, а анодом служит вольфрамовая нить, натянутая по оси трубки. На концах трубки устроены выводы электродов, один конец со знаком плюс соединен с нитью, другой (со знаком минус) – с катодом.

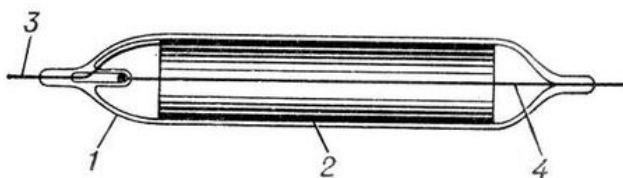


Рис. 4.2.11. Схема стеклянного счётчика Гейгера-Мюллера: 1 – герметически запаянная стеклянная трубка; 2 – катод (тонкий слой меди на трубке из нержавеющей стали); 3 – вывод катода; 4 – анод (тонкая натянутая нить).

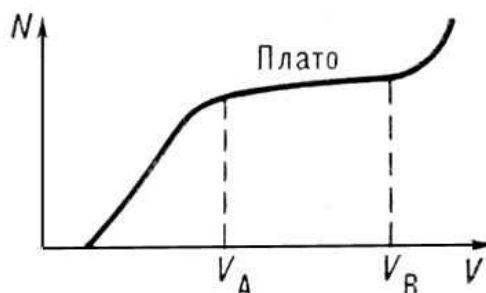


Рис. 4.2.12. Счётная характеристика счётчика Гейгера-Мюллера.

Внутренний объем счетчика заполняется инертным газом с добавкой многоатомных газов, до 10% по объему, паров спирта или галогенов при пониженном давлении (10–100 миллиметров ртутного столба). На анод подают положительное напряжение  $U_0$  порядка 1500 вольт относительно катода. В объеме счетчика возникает неоднородное электрическое поле, напряженность которого изменяется по мере приближения к аноду по закону  $\frac{1}{r}$ , где  $r$  – текущее значение радиуса в объеме счетчика. Гиперболическое изменение напряженности поля, также как и в пропорциональном счетчике, приводит к ускорению электронов по направлению к аноду. Вблизи поверхности анода электроны ускоряются до таких энергий, что приобретают способность производить вторичную ударную ионизацию рабочего газа. Процесс размножения ионов при вторичной ионизации становится лавинообразным. Возникает коронный разряд, распространяющийся вдоль нити анода. Ток на выходе счетчика возрастает, и сигнал может быть зарегистрирован при минимальном усилении. Таким образом, в счетчике Гейгера-Мюллера реализуют механизм газового усиления. Газовый разряд, обеспечивающий газовое усиление ионизационного тока является самостоятельным, а амплитуда электрического

импульса не зависит от энергии частицы, инициировавшей газовый разряд. Если за гейгеровской областью продолжать повышение напряжения, то наступит область непрерывного (самопроизвольного) разряда, который уже не вызывается ионизацией. В этом случае счетчик не пригоден и может выйти из строя вследствие пробоя.

Чувствительность счетчика Гейгера-Мюллера так велика, что достаточно создание хотя бы одной пары ионов в его объеме, чтобы произошел самостоятельный газовый разряд. Основной характеристикой счетчика является зависимость числа импульсов, возникающих на выходе, от приложенного к электродам напряжения при постоянном во времени облучении счетчика потоком ионизирующего излучения (рис. 4.2.12). Согласно приведенным на рисунке данным, для счетчика существует область напряжения при которой частицы, проходящие через него, вообще не вызывают газового разряда. На следующем участке не каждая заряженная частица может вызвать газовый разряд, а только такая, которая создает плотность ионизации выше порогового значения. На этом участке наблюдается рост числа отсчетов с ростом напряжения. На участке от  $U_A$  до  $U_B$  все проходящие через счетчик заряженные частицы, создавшие хотя бы одну пару ионов, инициируют самостоятельный газовый разряд, и число отсчетов за промежуток времени стабилизируется. Этот участок счетной характеристики называют «плато». Плато счетной характеристики не является строго параллельным оси абсцисс. Качество счетчика определяется протяженностью и наклоном плато. Протяженность плато может составлять от нескольких десятков до сотен вольт. Если протяженность плато составляет лишь несколько вольт или плато вовсе не проявляется, то счетчик бракуют. Наклон плато определяют по следующему соотношению:

$$\delta_N = \frac{N_2 - N_1}{\bar{N}} 100\%, \quad (4.2.7)$$

где  $N_1$ ,  $N_2$  и  $\bar{N}$  – скорости счета импульсов в начале, в конце плато и среднее значение, соответственно.

В зависимости от газа, заполняющего счетчики Гейгера-Мюллера, они подразделяются на самогасящиеся, в которых разряд прекращается под действием внутренних причин за интервал времени порядка  $10^{-7}$  с с момента возникновения, и несамогасящиеся, в которых возникший разряд горит до тех пор, пока не прекратится в результате внешнего воздействия.

Для моделирования механизма разряда в несамогасящихся счетчиках его представляют в качестве некоторой электрической емкости, заряженной до потенциала источника питания. Предполагается, что в какой-то точке счетчика произошла ионизация за счет вторичного электрона, выбитого с катода. Вновь образующиеся электроны будут двигаться к аноду (центральному электроду – нити), которого они достигнут за весьма короткий промежуток времени – порядка  $10^{-7}$ – $10^{-8}$  с. Малоподвижные положительно заряженные ионы направляются к катоду счетчика. Практически за время движения электронов положительные ионы остаются на месте, образуя вокруг нити плотный чехол, сильно уменьшающий напряженность электрического поля вблизи нее. Положительные ионы, попадающие на катод счетчика, нейтрализуются, выбивая электроны с поверхности металла. При этом получающиеся нейтральные атомы газа находятся в возбужденном состоянии и излучают фотоны, которые с поверхности катода могут вырвать дополнительные электроны – родоначальники новых лавин, если напряженность поля вокруг нити приняла первоначальное значение. Дополнительные электроны с катода могут быть вырваны в процессе первичной ионизации, так как часть атомов газа будет находиться в возбужденном состоянии, излучая фотоны, которые могут вызвать образование лавин. В результате описанных процессов разряд в счетчике становится непрерывным. Он может продолжаться до тех пор, пока напряжение на аноде не будет понижено высокоомным резистором  $R$ , включенным последовательно со счетчиком. В этом случае высокоомная нагрузка будет являться внешним воздействием, в результате которого разряд прекратится. Интенсивное образование разряда в счетчике уменьшает напряженность электрического поля между электродами до такой величины, при которой дальнейшее образование разряда становится невозможным. Благодаря высокоомному резистору в схеме включения счетчика восстановление разности потенциалов на нем происходит медленно. Очередной разряд в счетчике может произойти только после восстановления необходимого напряжения на электродах счетчика. Это занимает достаточно длительное время и поэтому

такие счетчики называют медленными. Несамогасящиеся счетчики заполняются одним из одноатомных газов (аргоном, неоном, ксеноном и другими).

На практике важно, чтобы скорость работы счетчика была высокой. Поэтому чаще используются самогасящиеся счетчики Гейгера-Мюллера, которые также называют быстрыми. Самогасящиеся счетчики, кроме одноатомного газа, наполняются некоторым количеством паров одного из многоатомных органических соединений (этиловый спирт, этилен, изопентан и другие). Потенциал ионизации многоатомного газа должен быть ниже, чем потенциал ионизации основного газа. Такой состав наполнителя счетчика обуславливает автоматическое гашение разряда без какого-либо внешнего вмешательства. Большое распространение получили самогасящиеся счетчики, наполненные смесью из аргона (потенциал ионизации 15,7 эВ) при давлении 87 мм.рт.ст. и паров этилового спирта (потенциал ионизации 11,3 эВ). В таком счетчике прекращение возникшего разряда под действием вторичных электронов, выбитых с катода счетчика, достигается за счет диссоциации многоатомных молекул спирта, которые поглощают кванты излучения как от возбужденных атомов аргона, препятствуя тем самым возникновению фотоэффекта на катоде, так и от нейтрализации положительных ионов аргона на катоде счетчика. Практически только ионы спирта достигают катода счетчика. Это объясняется тем, что ионы аргона в результате столкновений с молекулами спирта нейтрализуются, так как ион аргона имеет больший потенциал ионизации, чем молекула спирта. Образовавшиеся возбужденные атомы аргона возвращаются в основное состояние с испусканием фотонов, которые, в свою очередь, поглощаются молекулами спирта. Положительные ионы спирта, подойдя к катоду на достаточно малое расстояние ( $10^{-7}$  см), вырывают из него при нейтрализации электроны и превращаются в возбужденные молекулы, которые диссоциируют гораздо раньше ( $10^{-13}$  с), чем излучают ( $10^{-8}$  с). Таким образом, разряд в счетчике с добавкой многоатомных молекул носит однолавиный характер. Однако, срок эксплуатации самогасящихся счетчиков определяется числом молекул спирта, наполняющих его объем. Обычно счетчик содержит порядка  $10^{20}$  молекул спирта. При каждом импульсе диссоциирует  $10^{10}$  молекул. Следовательно, продолжительность жизни счетчика составляет около  $10^{10}$  отсчетов. На практике устойчивое гашение имеет место приблизительно после  $10^8$  разрядов. Применяются также Гейгеровские счетчики с наполнением гасящей смесью из инертных газов – неона с примесью аргона и одного из галогенов – хлора или брома (до 0,5%), потенциалы ионизации которых (13,2 и 12,8 эВ) ниже потенциалов ионизации неона (21,5 эВ) и аргона (15,7 эВ). Механизм разряда в галогеновых счетчиках описывается по аналогии с многоатомными органическими соединениями. Различие заключается в том, молекулы галогенов самопроизвольно возвращаются в двухатомное состояние. Таким образом, в результате процессов ионизации состав смеси счетчиков не изменяется. Поэтому галогеновые счетчики обладают неограниченным сроком службы. Кроме того, такие счетчики имеют небольшое рабочее напряжение – 300–400 В (для обычных счетчиков необходимое напряжение составляет 700–1600 В), не боятся перегрузок, имеют сравнительно высокую скорость счета (до  $2 \cdot 10^3$  имп/с). К недостаткам галогенных счетчиков следует отнести значительный наклон плато (более 5% на 100 В) и длительное время развития заряда (примерно на два порядка выше, чем у высоковольтных счетчиков). Из-за химического действия галогенов для изготовления счетчиков применяют коррозионностойкие материалы. В частности, катод изготавливается из нержавеющей стали, тантала или углерода, а анод – из вольфрама.

Скорость работы счетчика определяется временем полноценной регистрации отдельных импульсов от ионизирующих частиц. На рисунке 4.2.13 показана зависимость изменения величины импульса от времени его возникновения после предыдущего импульса (сплошная кривая) и возникновение последующих импульсов (пунктирные кривые).  $T_m$  – **мертвое время**, в течение которого счетчик не способен зарегистрировать вновь поступающие частицы. Мертвое время наступает после возникновения лавины в счетчике. За это время электроны собираются на аноде, а положительные ионы движутся от анода к катоду. Самогасящиеся счетчики имеют мертвое время порядка  $10^{-4}$  с, то есть на два порядка меньше, чем несамогасящиеся ( $10^{-2}$  с).  $T_g$  – **время восстановления**. Это интервал времени от конца мертвого времени до момента полного восстановления разности потенциалов на электродах счетчика (до момента, когда положительные ионы достигнут катода). Если частица попадет в

счетчик во время восстановления, то образующийся при этом импульс (пунктирные кривые) будет иметь амплитуду меньше номинального значения. При наличии в схеме регистрации дискриминатора такой импульс зарегистрирован не будет. Время восстановления самогасящегося счетчика составляет около  $10^{-4}$  с. Длительность импульса  $\tau$  определяется суммой мертвого времени и времени восстановления.

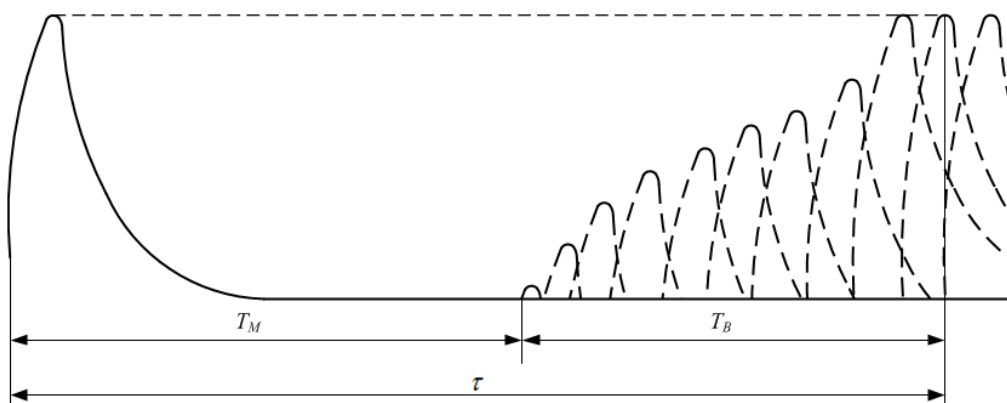


Рис. 4.2.13. Зависимость изменения величины счетного импульса от времени.

Благодаря самой высокой эффективности регистрации в классе газонаполненных детекторов счетчики Гейгера-Мюллера находят себе такую же область применения как ионизационные камеры и газовые счетчики. Детектор такого типа является типичным для использования в дозиметрических и радиометрических системах разного типа и назначения. В свою очередь основным недостатком счетчиков Гейгера-Мюллера является отсутствие пропорциональности между энергией регистрируемого излучения и амплитудой сигнала. Поэтому отсутствует возможность их использования в спектрометрических системах.

#### NS4.2.4 Сцинтилляционные детекторы

Явление люминесценции является основой для возникновения и развития сцинтилляционных методов детектирования ионизирующего излучения. **Люминесценция** — неравновесное излучение, представляющее собой избыток энергии над тепловым излучением тела при данной температуре. На возникновение люминесценции оказывает влияние вид возбуждения и агрегатное состояние вещества.

В зависимости от типа источника энергии, превращаемой в данном веществе в энергию люминесцентного излучения, различают: фотолюминесценцию (возбуждение светом), радиофотолюминесценцию (инициирование ионизирующим излучением с последующим возбуждением светом), термо- и радиотермолюминесценцию (инициирование ионизирующим излучением с последующим нагреванием), хемилюминесценцию (возбуждение за счет энергии, выделяющейся при химических реакциях). Способностью люминесцировать обладает большая группа твердых, жидких и газообразных веществ.

При возникновении люминесценции от действий ионизирующего излучения можно выделить три основные стадии: поглощение энергии излучения и переход тела в неравновесное состояние; трансформация энергии, полученной телом, испускание света (или возникновение других оптических эффектов) и переход тела в равновесное состояние.

Неравновесный характер люминесценции, возникшей под действием ионизирующего излучения, связан с перераспределением энергии внутри атомов (молекул) или с ионизацией атомов и последующей рекомбинацией свободного электрона (дырки) с ионизированным атомом. Носители заряда (электроны и дырки) могут локализоваться в центрах захвата, являющихся накопителями поглощенной энергии, которая может быть освобождена при дополнительном возбуждении (освещении тела определенным участком спектра света или



нагревом). При возвращении тела в равновесное состояние наблюдается возникновение новых оптических эффектов (например, радиофотолюминесценция, термолюминесценция, изменение цвета, деградация люминесценции), которые могут служить мерой поглощенной энергии.

Процессы люминесценции, используемые в методах измерения ионизирующих излучений, можно разделить на: сцинтилляционные – нестимулированные с быстрым высвечиванием центров люминесценции; процессы, характеризующиеся запасенной светосуммой и последующим стимулированным высвечиванием центров люминесценции; процессы, приводящие к тушению нормальной люминесценции; процессы, приводящие к образованию центров окраски.

На основе нестимулированной люминесценции (сцинтилляции) разработаны сцинтилляционные детекторы с твердыми, жидкими и газообразными сцинтилляторами. На основе стимулированной люминесценции – термолюминесцентные, радиофотолюминесцентные и деградирующие люминесценцию приборы и детекторы. На образовании центров окраски – дозиметры, основанные на окрашивании стекол и пластиков.

Механизм термолюминесценции объясняется с помощью теории зонной проводимости, разработанной для кристаллических материалов (см. раздел 4.2.5). Данная модель предполагает наличие в люминесцирующих веществах (фосфорах) трех энергетических зон, характерных для полупроводниковых материалов (рис. 4.2.14а): валентной зоны (заштрихованная область), запретной (А) и зоны проводимости (П). Валентная зона, в которой находятся электроны атомов и которая представляет собой симбиоз доступных в атоме и смещенных в результате межатомных и межмолекулярных взаимодействий электронных уровней, отделена от зоны проводимости запретной зоной, имеющей конечную энергетическую ширину. В запретной зоне предполагается существование дискретных уровней (центров) захвата  $z$  и активации А, обусловленных нарушениями межатомных связей и наличием примесей (рис. 4.2.14б).

При облучении неактивированный фосфор, имеющий структурные дефекты (рис. 4.2.14а) создаются центры, которые обусловлены захватом электронов или дырок вакансиями  $z, z'$ . При нагревании кристалла электрон переходит в зону проводимости 1, а затем рекомбинирует с вакантным уровнем  $z'$  (дыркой). Этот переход сопровождается люминесценцией  $L$ . Если кристалл активирован примесью ( $Ag$ ), то ионизирующее излучение выбивает электрон, который захватывается ловушкой  $z$ . Образовавшаяся дырка связана с  $Ag^+$ . Нагрев кристалла приводит к переходу электрона из ловушки  $z$  в зону проводимости 1. Из зоны проводимости электрон рекомбинирует с дыркой активатора А, который переходит в возбужденное состояние  $Ag^{+*}$  3. Из возбужденного состояния  $Ag^{+*}$  возвращается в исходное 4 с выходом люминесценции  $L'$ , находящейся в более коротковолновой области излучения, чем в случае неактивированного фосфора (например, ультрафиолетовой). В процессе измерения люминесценции (нагрев) центры окраски, созданные ионизирующим излучением, разрушаются.

Сцинтилляционные методы регистрации излучений основаны на измерении интенсивности световых вспышек, возникающих в люминесцирующих веществах при прохождении через них ионизирующих излучений. Впервые метод сцинтилляции был использован в 1903 г. для визуального подсчета числа альфа-частиц с помощью прибора, названного спинтарископом. Схематическое изображение прибора приведено на рис. 4.2.15. Основным элементом спинтарископа является экран 1 из сернистого цинка, на котором через лупу 3 можно наблюдать отдельные вспышки (сцинтилляции) от альфа-частиц, излучаемых радиоактивным препаратом, нанесенным на острие 2. Было установлено, что каждая из этих сцинтилляций создается отдельной  $\alpha$ -частицей, попадающей на экран. Визуальный метод сцинтилляций был использован в дальнейшем в основном для регистрации  $\alpha$ -частиц и протонов с энергией в несколько миллионов электрон-вольт. Отдельные быстрые электроны регистрировать не удалось, так как они вызывают очень слабые сцинтилляции. Иногда при облучении электронами сернисто-цинкового экрана удавалось наблюдать вспышки, но это происходило лишь тогда, когда на один и тот же кристаллик сернистого цинка попадало одновременно достаточно большое число электронов. Фотоны гамма-излучения никаких

вспышек на экране не вызывают, создавая лишь общее свечение. Это позволяет регистрировать  $\alpha$ -частицы в присутствии интенсивного потока  $\gamma$ -излучения.

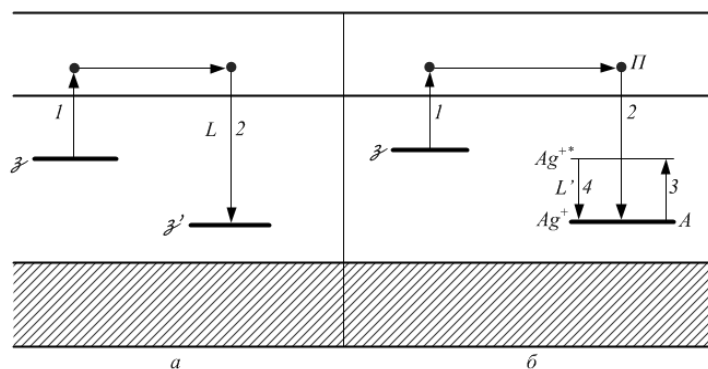
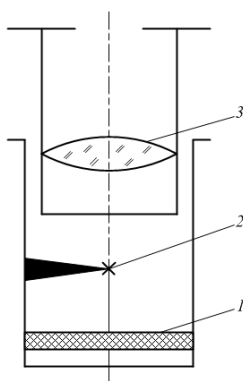


Рис. 4.2.14. Схема размещения зон проводимости и образования люминесценции

Визуальный метод сцинтилляций позволяет регистрировать очень небольшое число частиц в единицу времени. Наилучшие условия для счета сцинтилляций получаются тогда, когда их число лежит в пределах от 20 до 40 в минуту. Кроме того, результата метода являются субъективными, так как зависят от сотрудника лаборатории, занимающегося регистрацией вспышек. Несмотря на недостатки, визуальный метод сцинтилляций сыграл большую роль в развитии ядерной и атомной физики. С помощью него Резерфорд регистрировал  $\alpha$ -частицы при их рассеянии на атомах. Именно эти опыты привели его к открытию ядра. Впервые визуальный метод позволил обнаружить быстрые протоны, выбиваемые из ядер азота при бомбардировке их  $\alpha$ -частицами, то есть первое искусственное превращение ядра. Метод сохранял свое значение вплоть до тридцатых годов прошлого столетия и до сих пор используется в учебных целях, так как является весьма наглядным.



1. Экран из сернистого цинка.
2. Источник  $\alpha$ -частиц.
3. Окно для наблюдения и счета сцинтилляций.

Рис. 4.2.15. Схема спинтарископа

В 40-х годах прошлого столетия были разработаны и стали использоваться на практике приборы, позволяющих осуществлять автоматическую регистрацию вспышек флуоресценции. Таким устройством стал фотоэлектронный умножитель (ФЭУ). Современный сцинтилляционный счетчик представляет собой комбинацию сцинтилляционного кристалла (сцинтиллятора) с ФЭУ. ФЭУ позволяют преобразовывать слабые световые вспышки от сцинтиллятора в достаточно большие электрические импульсы, которые можно зарегистрировать обычной электронной аппаратурой. ФЭУ в некоторой степени можно сравнивать с пропорциональными счетчиками. В пропорциональных счетчиках для увеличения импульса используется газовое усиление, а в ФЭУ – вторичная эмиссия электронов на динодах,

приводящая к значительному усилению электронного тока (коэффициент усиления фотоэлектронных умножителей достигает  $10^5$ – $10^{10}$ ).

Сцинтилляционные счетчики можно применять для измерения числа заряженных частиц, гамма-квантов, быстрых и медленных нейтронов; для измерения мощности дозы от бета, гамма и нейтронного излучений; для исследований спектров гамма- и нейтронного излучений.

Сцинтилляционный метод имеет ряд преимуществ перед другими методами:

– высокая эффективность регистрации проникающих излучений (для гамма излучения – десятки процентов). Поэтому сцинтилляционные счетчики имеют чувствительность на несколько порядков выше, чем ионизационные камеры и газовые пропорциональные счетчики. Кроме того, они способны регистрировать излучение на много порядков больших энергий, чем газовые счетчики;

– малое время высвечивания сцинтилляторов (для неорганических кристаллов – порядка  $10^{-7}$  с, для органических –  $10^{-8}$ – $10^{-9}$ ). Это обеспечивает высокую временную разрешающую способность сцинтилляционных счетчиков или малое мертвое время. Следовательно, представляется возможность проводить измерения интенсивных потоков излучения и короткоживущих радионуклидов;

– для ряда сцинтилляторов и определенных излучений ( $\alpha$ ,  $\beta$ ,  $\gamma$ ) существует пропорциональность между амплитудой светового импульса и энергией частицы, что удобно при использовании сцинтилляционных счетчиков для спектрометрии ионизирующих излучений.

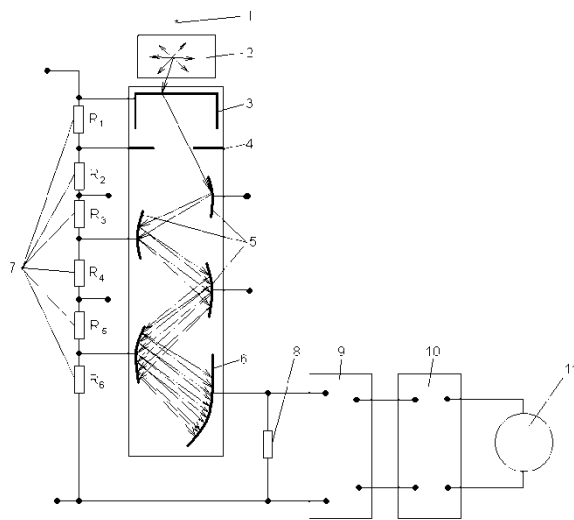
Схема сцинтилляционного счетчика показана на рис. 4.2.16. Процессы, происходящие в детектирующей системе, описываются в порядке, приведенном далее по тексту абзаца. Ионизирующее излучение, выходящее из источника 1, поступает в сцинтиллятор 2 и создает в нем сцинтилляционные вспышки. Часть фотонов, испускаемых сцинтиллятором, попадает на катод ФЭУ 3. ФЭУ представляет собой баллон, в котором создан вакуум. На один из участков внутренней поверхности ФЭУ нанесен полупрозрачный сурьмяно-цезиевый слой, служащий катодом. Под воздействием фотонов с катода вырываются фотоэлектроны, которые, пройдя фокусирующую диафрагму 4, электрическим полем последовательно направляются на электроды умножители (диноды или эмиттеры) 5 и собираются на аноде (коллекторе) 6. Для питания ФЭУ используется источник стабилизированного напряжения  $\sim 1000$ – $2200$  В и набор сопротивлений  $R_1 - R_6$ , являющийся делителем напряжения 7. Далее через анод проходит ток и на сопротивлении 8 появится импульс напряжения, который, пройдя усилитель 9, поступает на пересчетный прибор 10 и передается на устройство для обработки результатов измерений 11 (например, пересчетное устройство).

Таким образом, все процессы, происходящие в сцинтилляционном счетчике, можно разделить на следующие стадии: 1) поглощение излучения в сцинтилляторе и образование заряженных частиц; 2) ионизация и возбуждение атомов и молекул сцинтиллятора, заряженными частицами и излучение фотонов; 3) соби́рание фотонов на фотокатод ФЭУ; 4) поглощение фотонов на катоде ФЭУ и выход фотоэлектронов; 5) фокусировка фотоэлектронов на первый эмиттер и электронное умножение.

При прохождении через сцинтилляционный детектор ионизирующего излучения, например фотонов гамма-излучения с энергией  $E_{\Gamma}$ , в его рабочей области образуются заряженные частицы, энергия которых может быть поглощена в детекторе полностью или только некоторая ее часть  $A$ .

Поглощенная энергия  $AE_{\Gamma}$  зависит от соотношения толщины  $d$  сцинтиллятора и максимального пробега заряженной частицы в сцинтилляторе. Длина свободного пробега обусловлена природой и энергией частиц и тормозной способностью сцинтиллятора.

Полное поглощение энергии заряженной частицы в сцинтилляционном кристалле (то есть  $A = 1$ ) и 100%-ная эффективность их регистрации возможна в том случае, если толщина кристалла больше максимальной длины пробега  $r$  заряженной частицы ( $d > r$ ).



1. Источник ионизирующего излучения.
2. Сцинтилляционный детектор.
3. Фотокатод ФЭУ.
4. Диафрагма.
5. Диноды.
6. Анод.
7. Делитель напряжения.
8. Сопротивление, на котором регистрируется скачек напряжения.
9. Усилитель.
10. Пересчетный прибор.
11. Устройство обработки результатов измерений.

Рис. 4.2.16. Принципиальная схема сцинтилляционного счетчика.

При облучении сцинтиллятора  $\gamma$ -квантами обычно только часть их энергии остается в кристалле и расходуется на образование заряженных частиц (вследствие большой проникающей способности  $\gamma$ -излучения).

Доля поглощенной в сцинтилляторе энергии определяется выражением:

$$\eta = 1 - e^{-\mu d} \approx \mu, \quad (4.2.8)$$

где  $\mu$  – коэффициент ослабления излучения в материале детектора.

Это величина, соответствующая эффективности регистрации излучения в детекторе.

Таким образом, число заряженных частиц, создаваемых ионизирующим излучением в сцинтилляторе, и их энергия обусловлены энергией излучения  $E_{II}$  и процессом поглощения. Поглощенная энергия в сцинтилляторе  $E_{II}$  в основном расходуется на ионизацию и возбуждение, в процессе утилизации которых часть энергии может перераспределяться в тепло.

Возбужденные молекулы и атомы кристалла вновь излучают энергию в виде фотонов света с энергией  $E_{\phi}$ . При этом спектр излучения различных сцинтилляторов не зависит от природы ионизирующих частиц и совпадает со спектром люминесценции, вызванной ультрафиолетовым излучением, эффективность преобразования которого больше, чем в случае действия ионизирующих частиц.

Эффективность преобразования энергии заряженных частиц в световую энергию фотонов называется **конверсионной эффективностью** сцинтиллятора  $\eta'$  (**физический световой выход**). Она определяется отношением энергии фотонов  $E_{\phi}$ , образующихся в сцинтилляторе, к поглощенной в нем энергии  $E_{II}$  заряженных частиц или отношением энергии светового кванта  $h\nu$  к средней энергии  $W$ , затрачиваемой частицей на его создание:

$$\eta' = \frac{E_{\phi}}{E_{II}} = \frac{p \overline{h\nu}}{E_{II}} = \frac{\overline{h\nu}}{W}, \quad (4.2.9)$$

где  $E_{\phi} = p \overline{h\nu}$ ,  $p$  – число фотонов;  $W = E_{II} / p$ .

Оставшаяся часть энергии  $E_{II} - E_{\phi}$  тратится на переходы без испускания света.

Отношение световой энергии, выходящей из сцинтиллятора, к энергии, потерянной в нем частицей, называется **технической эффективностью** (часть световой энергии поглощается в кристалле) или **техническим световым выходом**. Техническая эффективность сцинтиллятора зависит от прозрачности сцинтиллятора к собственному излучению, от его толщины и

посторонних примесей. У качественных сцинтилляторов техническая эффективность должна быть близка к конверсионной эффективности.

На практике используется понятие **относительного светового выхода** (то есть отношения технического светового выхода данного сцинтиллятора к техническому световыходу эталонного сцинтиллятора).

Число испущенных сцинтиллятором фотонов рассчитывается с помощью выражения:

$$p = \frac{E_{\text{п}} \eta'}{h\nu}. \quad (4.2.10)$$

Процесс выхода световой энергии из сцинтиллятора называется **высвечиванием**. Высвечивание не является мгновенным процессом. Интенсивность высвечивания  $I_t$  изменяется со временем  $t$  по экспоненциальному закону.

$$I_t = I_0 e^{-\frac{t}{\tau'}}, \quad (4.2.11)$$

где  $I_0$  – максимальная интенсивность излучения при  $t=0$ ;  $\tau'$  – постоянная времени высвечивания, характеризующая время, необходимое для уменьшения интенсивности сцинтилляции в  $e$  раз.

Постоянная времени высвечивания наиболее быстрой компоненты у разных сцинтилляторов изменяется в пределах от  $10^{-9}$  до  $10^{-5}$  сек.

Число фотонов  $p_t$ , выходящих за время  $t$ , равно:

$$p_t = p(1 - e^{-\frac{t}{\tau'}}). \quad (4.2.12)$$

Световой выход для различных видов ионизирующих излучений в одном и том же сцинтилляторе различен. Он зависит от массы, заряда и энергии частицы. Поэтому вводится характеристика, называемая отношением  $\alpha/\beta$ , показывающая, во сколько раз световой выход сцинтиллятора под действием  $\alpha$ -излучения больше или меньше, чем под действием  $\beta$ -излучения.

Важной характеристикой сцинтиллятора является также **спектр люминесценции**, то есть распределение излучаемых фотонов по энергиям. Спектр люминесценции сцинтиллятора должен соответствовать спектральной чувствительности ФЭУ.

Не все фотоны, возникшие в сцинтиляторе, достигают катода фотоумножителя, так как имеются потери испускаемого света, зависящие в основном от оптической прозрачности сцинтиллятора к своему собственному световому излучению, от спектра люминесценции и условий собирания света. **Оптическая прозрачность сцинтиллятора**  $T_p$  находится в зависимости от коэффициента оптического поглощения  $\mu'$  и длины пути  $x$  фотона в кристалле:

$$T_p = e^{-\mu'x}. \quad (4.2.13)$$

Длина пути фотона в кристалле обычно бывает больше толщины кристалла  $d$ , так как фотон испытывает многократное отражение от поверхности кристалла прежде, чем он достигнет катода фотоумножителя. Коэффициент оптического поглощения  $\mu'$  зависит от длины волны падающего флуоресцирующего излучения. Чем больше область их перекрытия, тем больше фотонов с длиной волны, соответствующей области перекрытия, поглощается сцинтиллятором. Для некоторых кристаллов (антрацен, йодистый натрий и другие) указанная область мала, следовательно, мало значение  $\mu'$ . Поэтому можно увеличивать толщину кристалла  $d$ , что повлечет за собой возрастание доли энергии, теряемой в сцинтиляторе при прохождении через него заряженных частиц или ионизирующего излучения. Для некоторых поликристаллов (сернистый цинк и др.)  $\mu'$  велико из-за большого внутреннего рассеяния света, поэтому такие сцинтилляторы должны быть тонкими.

Помимо прозрачности на световой выход влияют также рассеяние света через верхнюю и боковые поверхности сцинтиллятора и собирание света на фотокатоде через нижнюю

поверхность. Величина сбора света зависит от оптической геометрии и телесного угла, под которым виден сцинтиллятор с фотокатода. Для того, чтобы уменьшить рассеяние и максимально увеличить световой выход через нижнюю поверхность кристалла, верхнюю и боковую поверхности покрывают слоем MgO, серебрят или окружают алюминиевой фольгой, иногда эти поверхности делают шероховатыми, из-за чего увеличивается диффузионное отражение.

Примыкающую к ФЭУ поверхность кристалла смазывают обычным вазелином или глицерином, чтобы улучшить оптический контакт на границе между кристаллом и стеклянным баллоном ФЭУ.

Таким образом, число фотонов  $p'$ , которые попадут на катод фотоумножителя с учетом прозрачности кристалла  $T_p$  и сбора света  $\sigma$ , меньше числа фотонов  $p$ , испускаемых сцинтиллятором:

$$p' = T_p \sigma p. \quad (4.2.14)$$

Для отдельных специальных лабораторных образцов сцинтилляционных счетчиков можно принять  $T_p \approx 1$  и  $\sigma \approx 1$ .

На основании исследований современных сцинтилляционных счетчиков было установлено, что квантовый выход  $g$  фотоэлектронов с катода фотоумножителя на один испускаемый фотон сцинтиллятора колеблется от 10 до 20%. При этом испытывались такие счетчики, у которых спектр люминесценции был близок к кривой спектральной чувствительности фотокатода ФЭУ.

Зная число фотонов  $p'$ , попадающих на катод фотоумножителя, и квантовый выход  $g$  фотоэлектронов на один фотон, может быть вычислено число фотоэлектронов  $N_s$ , возникающих на катоде фотоумножителя:

$$N_s = p' g. \quad (4.2.15)$$

Подставляя значение  $p'$  и принимая, что  $T_p \approx 1$  и  $\sigma \approx 1$ , получаем выражение:

$$N_s = \frac{E_{\Pi} \eta' g}{h\nu} = \frac{E_{\Pi}}{f}, \quad (4.2.16)$$

$$\text{где } f = \frac{h\nu}{\eta' g} = \frac{h\nu W}{h\nu g} = \frac{W}{g},$$

а  $f$  – коэффициент, характеризующий отношение поглощенной энергии (кэВ), затраченной на образование одного фотона, к выходу фотоэлектронов с катода ФЭУ на один испускаемый сцинтиллятором фотон. Тогда:

$$N_s = \frac{E_{\Pi} g}{W}. \quad (4.2.17)$$

Если измеряемое излучение – поток  $\gamma$ -квантов, то в выражении необходимо учесть эффективность сцинтилляционного счетчика к  $\gamma$ -излучению, то есть ввести коэффициент ослабления  $\mu$ :

$$N_s = \frac{E_{\Pi} \mu \eta' g}{h\nu}. \quad (4.2.18)$$

Фотоэлектроны на катоде фотоумножителя могут возникать также за счет фона, который создается космическим излучением, радиоактивным загрязнением помещения, воздуха, радиоактивностью почвы, стекла ФЭУ и кристалла. Кроме того, в самом фотоэлектронном умножителе возникают собственные шумы, определяющие его **темновой ток**. Темновые импульсы появляются вследствие термоэлектронной эмиссии электронов с фотокатода. На фоне этих импульсов регистрируются измеряемые импульсы от источника. Темновые импульсы можно уменьшить, например, путем охлаждения фотоумножителя. В случае особо

жестких требований к собственным шумам фотоумножителя, например, при измерении малых активностей, применяются ФЭУ из специального натриевого стекла – так называемые бесшумовые ФЭУ (натриевое стекло не содержит радионуклида  $^{40}\text{K}$ ).

Число фотоэлектронов, возникающих на катоде ФЭУ, в дальнейшем увеличивается за счет вторичной эмиссии на последующих динодах.

Важной характеристикой фотоэлектронного умножителя является **интегральная чувствительность**, то есть отношение тока анода (А) к вызвавшему его световому потоку. Существенна также спектральная чувствительность фотокатода, которая должна соответствовать спектру высвечивания используемого в счетчике сцинтиллятора. Для сурьяно-цезиевого фотокатода ФЭУ, который применяется с кристаллом NaI(Tl), она лежит в области 400 нм.

Если ФЭУ имеет  $n$  динодов, а коэффициент электронного умножения каждого из них равен  $\delta$ , то ток, возникающий на аноде  $i_a$ , будет равен  $i_a = i_k \delta^n$ , где  $i_k$  – ток на фотокатоде.

Отношение анодного тока  $i_a$  к току на фотокатоде  $i_k$  называется **коэффициентом усиления фотоэлектронного умножителя**:

$$\zeta = \frac{i_a}{i_k} = \delta^n. \quad (4.2.19)$$

Для различных ФЭУ  $\zeta = 10^5 - 10^{10}$ ,  $n = 8 - 14$ . Наиболее распространенными покрытиями электродов являются сурьяно-цезиевые и различные высокоэффективные сплавы. Коэффициент электронного умножения  $\delta$  для различных покрытий находится в пределах от 3 до 10. Он зависит от вторичной электронной эмиссии материала динода, эффективности сбора электронов с предыдущего динода и разности потенциалов между динодами.

Число электронов  $N_3^a$ , собирающихся на аноде и определяющих величину сигнала на выходе ФЭУ, при поступлении на сцинтиллятор ионизирующей частицы с энергией  $E_{\Pi}$  равно:

$$N_3^a = \frac{E_{\Pi} \eta' g}{h\nu} \zeta. \quad (4.2.20)$$

Заряд, собираемый на аноде ФЭУ,

$$\Theta = N_3^a e = \frac{E_{\Pi} \eta' e g}{h\nu} \zeta, \quad (4.2.21)$$

изменяет потенциал на величину:

$$U = \frac{\Theta}{C} = \frac{E_{\Pi} \eta' g e \zeta}{h\nu C} = \frac{E_{\Pi} e \zeta}{fC}, \quad (4.2.22)$$

где  $C$  – емкость анода ФЭУ и монтажной цепи.

Последняя формула характеризует физические процессы, происходящие в сцинтилляционном счетчике. Используя формулу 4.2.40, можно оценить величину сигнала на выходе ФЭУ.

Время полета электронов через фотоумножитель составляет  $10^{-8} - 10^{-9}$  с.

В соответствие с вышеизложенными теоретическими положениями и практическими аспектами использования, к сцинтилляционным детекторам предъявляются следующие основные требования:

- высокая прозрачность сцинтиллятора к собственному излучению;
- небольшой ход с жесткостью в широком интервале энергий (для сцинтилляторов, используемых в дозиметрии);
- пропорциональность сцинтилляционной вспышки и поглощенной мощности дозы в значительном интервале энергий;
- радиационная стойкость;
- высокое значение конверсионной эффективности;
- малое время высвечивания;

– соответствие спектра люминесценции спектральной чувствительности фотокатода ФЭУ.

Сцинтилляторы классифицируются на неорганические и органические (кристаллические); органические пластмассовые (твердые растворы); органические жидкостные и газовые сцинтилляторы.

Чаще всего используются неорганические сцинтилляторы. Неорганические сцинтилляторы, применяемые для детектирования и спектрометрии ионизирующего излучения, можно разделить на три группы: сульфиды (например, ZnS(Ag)), активированные серебром или медью; галогениды щелочных металлов (NaI(Tl), CsI(Tl), LiI(Tl), активированные таллием) и другие.

Основные технические характеристики наиболее распространенных неорганических и органических кристаллических сцинтилляторов приведены в табл. 4.2.1. Сцинтилляторы типа сернистого цинка или кадмия, активированные серебром или медью, применяются в виде микрокристаллического порошка толщиной слоя 25–50 мг/см<sup>2</sup>. Такие порошки имеют очень низкую прозрачность  $T_p$  для люминесцентного (собственного) излучения, так что фотоумножитель может регистрировать только вспышки, которые возникают в поверхностном слое сцинтиллятора, прилегающих к фотокатоду.

Таблица 4.2.1. Технические характеристики кристаллических сцинтилляторов

Кристалл	Плотность, г/см <sup>3</sup>	Температура измерения, °С	Конверсионная эффективность для $\beta$ -частиц $\eta'$ , %	Время высвечивания $\tau$ , 10 <sup>-6</sup> сек	Световой выход относительно NaI(Tl)	$\alpha/\beta$	Примечание
ZnS(Ag)	4,1	+20	28	1	1	1,5	Регистрация тяжелых частиц
NaI(Tl)	3,67	+20	8,4	0,25	1	0,5	Регистрация бета и гамма излучения (пригоден для всех видов излучения)
NaI	3,67	-188	16,8	0,05	2	>1	Регистрация бета и гамма излучения
CsI(Tl)	4,51	+20	3	0,5	0,3	0,5	Регистрация гамма излучения
LiI(Tl)	4,06	+20	1	1,2	0,1	1<	Регистрация нейтронов
CsF	3,59	+20	0,1	0,05	0,095	0,2	Регистрация гамма излучения
CaWO <sub>4</sub>	6,1	+20	8,0	6,0	0,9	-	Регистрация тяжелых частиц
Антрацен (C <sub>14</sub> H <sub>10</sub> )	1,25	+20	6	0,27	1	0,1	Регистрация нейтронов
Стильбен (C <sub>14</sub> H <sub>12</sub> )	1,16	+20	2,5	0,006	0,4-0,7	0,08	Регистрация нейтронов

Сернистый цинк применяется для регистрации тяжелых частиц, обладающих малым пробегом в кристалле, что позволяет изготовить очень тонкие сцинтилляторы, которые практически прозрачны для собственного излучения. Конверсионная эффективность ZnS имеет



очень высокое значение и достигает 28 % при возбуждении  $\alpha$ -частицами. Время высвечивания составляет порядка  $10^{-6}$  с, что значительно больше по сравнению с временем высвечивания других сцинтилляторов. Сцинтиллятор CdS(Ag) может быть выращен в виде небольшого полупрозрачного монокристалла. Кристаллы CdS(Ag) применяются для регистрации  $\alpha$ -частиц.

Для исследования и спектрометрического анализа гамма-излучения лучшим щелочногалогидным сцинтиллятором является NaI(Tl). Он отличается большим выходом фотонного излучения при взаимодействии с потоком гамма-излучения. К недостаткам NaI(Tl) сцинтиллятора следует отнести его гигроскопичность (для предохранения от влаги кристалл заключают в алюминиевую упаковку). Кроме того, при продолжительном облучении поверхность кристалла приобретает желтоватый оттенок из-за выделения йода. При температуре жидкого азота световой выход неактивированного NaI увеличивается в два раза, время высвечивания при комнатной температуре уменьшается в пять раз по сравнению с NaI(Tl). Аналогичное явление наблюдается у монокристалла CsI. Световой выход S сцинтиллятора NaI(Tl) зависит от энергии  $E$   $\beta$ -частиц, протонов и дейтронов (рис. 4.2.17), а для  $\alpha$ -частиц эта зависимость имеет нелинейный характер. Световой выход и, следовательно, конверсионная эффективность уменьшаются с увеличением плотности ионизации (уменьшением энергии). Экспериментальные данные показывают, что значительная часть энергии  $\alpha$ -частиц затрачивается на переходы, не сопровождающиеся испусканием света.

Йодистый цезий (активированный таллием) CsI(Tl) по своим сцинтиллирующим свойствам аналогичен NaI(Tl). Монокристаллы LiI, LiI(Tl) применяются для регистрации нейтронного излучения. Сцинтилляторы CaWO<sub>4</sub> и CdWO<sub>4</sub> применяются в виде мелких кристаллов (из-за сложности выращивания монокристаллов) для обнаружения тяжелых частиц. Монокристаллы CaI<sub>2</sub>(Eu) обладает очень высоким световым выходом – в 1,5–1,8 раза больше, чем NaI(Tl), но он еще более гигроскопичен, чем NaI(Tl).

Исследования и поиск новых неорганических сцинтилляторов не прекращаются. Например, одним из направлений поисков является разработка новых детекторов, имеющих повышенное разрешение (определение термина приводится в разделе 4.2.5). В частности, был изготовлен детектор на основе соединения LaBr, разрешение которого в разы превышает возможности традиционного NaI(Tl) детектора, при сохранении аналогичной эффективности регистрации фотонов гамма-излучения. Часто проблемы с использованием новых детекторов связаны со сложностью выращивания кристаллов нужной чистоты и большого размера, достаточно эффективных для регистрации высокоэнергетического гамма-излучения.

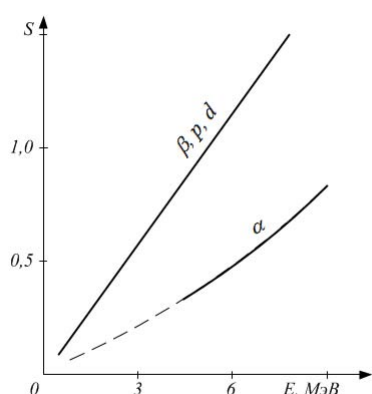


Рис. 4.2.17. Зависимость светового выхода NaI(Tl) сцинтиллятора от энергии ионизирующих частиц

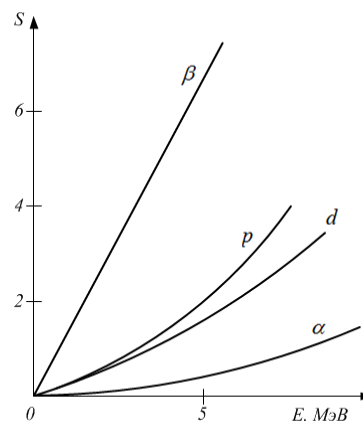


Рис. 4.2.18. Зависимость светового выхода антрацена от энергии ионизирующих частиц

Сцинтилляционные детекторы, на основе неорганических кристаллов имеют очень широкое и разнообразное применение. На их основе создана большая группа приборов всех назначений (дозиметрических, радиометрических, спектрометрических) и классов

(лабораторные, переносные, исследовательские). В качестве примера на рис. 4.2.19 приведены внешний и некоторые технические характеристики поисковой переносной многофункциональной системы InSpector 1000 с детектором NaI(Tl) размером 2×2 дюйма.

Особенностью всех органических сцинтилляторов является очень малое время высвечивания – на два порядка ниже, чем у неорганических сцинтилляторов, но зато органические сцинтилляторы имеют несколько меньшую конверсионную эффективность. Содержание водорода в органических соединениях позволяет использовать их для регистрации быстрых нейтронов. Особенно широко для этих целей используется стильбен.



1. Размер детектора – 2×2 дюйма.
2. Диапазон регистрируемых энергий гамма- и рентгеновского излучения – 50 кэВ – 3 МэВ.
3. Тип детектора – IPROS с температурной стабилизацией для определения изотопного состава излучателей

*Рис. 4.2.19. Внешний вид и технические характеристики InSpector 1000 с детектором NaI(Tl) размером 2×2 дюйма*

Для регистрации нейтронов различных энергий используются комбинированные сцинтилляторы. В их состав входят органические и неорганические сцинтиллирующие материалы, а также несцинтиллирующие вещества (водородосодержащие материалы, вещества с большим сечением поглощения тепловых нейтронов –  $\text{Li}^6$ ,  $\text{B}^{10}$ ). Более подробно использование сцинтилляционных счетчиков для регистрации нейтронов описано в разделе 4.3.2. Комбинированные сцинтилляторы применяются также для суммарной и раздельной регистрации ионизирующих излучений (различные слоистые сцинтилляторы, состоящие из пластмассы с нанесенным на нее слоем  $\text{ZnS}(\text{Ag})$ ).

Из всех органических сцинтилляторов антрацен имеет наибольшую конверсионную эффективность – 6 %. Время высвечивания –  $2,7 \cdot 10^{-7}$  с. Зависимость светового выхода для антрацена от энергии нелинейна для всех тяжелых частиц (протонов, дейтронов и  $\alpha$ -частиц, рис. 4.2.18) по той же причине, что и для  $\alpha$ -частиц при использовании неорганического сцинтиллятора NaI(Tl).

Высвечивание органических сцинтилляторов можно представить в виде суммы двух экспоненциальных компонент, состоящей из быстрого компонента (время высвечивания около  $10^{-9}$  с), несущего 80 % полного светового выхода, и медленных компонентов (время высвечивания около  $0,1-100 \cdot 10^{-6}$  с). Установлено, что время высвечивания быстрого компонента не зависит от вида ионизирующего излучения, а время высвечивания медленных компонентов зависит от вида частиц: чем тяжелее частица, тем оно больше. Такой характер сцинтилляций объясняется тем, что часть первичных возбужденных молекул при переходе в основное состояние испускают фотоны света, которые образуют быстрый компонент сцинтилляции со временем высвечивания около  $10^{-9}$  с. Кроме того, возбужденные молекулы могут иметь иное происхождение, а именно: образовываться при рекомбинации электронов и первоначально ионизированных молекул. Они принципиально ничем не отличаются от первоначально возбужденных молекул, но время высвечивания сцинтилляций в них определяется временем рекомбинации ионизированных молекул, которое может составлять порядка  $10^{-7}-10^{-4}$  с.

Жидкостные органические сцинтилляторы подразделяются на двухкомпонентные (раствор и активатор) и многокомпонентные (раствор, активатор и смеситель спектра). Наилучшими растворителями являются ароматические соединения: толуол, ксилол,

фенилциклогексан, бензол и другие. Весьма эффективными активаторами (растворенные ароматические соединения) являются *p*-терфинил и различные фенилоксазолы (РРО, РОРОР и другие). Смеситель спектра (преобразователь частоты) предназначен для смещения спектра сцинтиллятора в область наибольшей чувствительности катода ФЭУ, что позволяет получать максимальный сигнал. Для этого смеситель спектра должен иметь спектр возбуждения, перекрывающийся со спектром излучения основного сцинтиллятора, а также спектр излучения, находящийся в области максимальной спектральной чувствительности фотокатода ФЭУ. Концентрацию как активатора, так и смесителя спектра, выбирают из условий максимального светового выхода. Световой выход с увеличением концентрации активатора вначале растет быстро и достигает максимального значения, а затем медленно уменьшается. В сцинтиллятор добавляют десятые доли процента смесителя спектра. Этого вполне достаточно для смещения спектра люминесценции в длинноволновую область.

При наличии в жидкостном сцинтилляторе растворенного кислорода люминесцентные свойства его резко снижаются. Для их восстановления необходимо пропустить через раствор очищенный азот или аргон.

Световой выход у жидких сцинтилляторов меньше, чем у органических кристаллов. Он составляет от 0,04 до 0,4 относительно светового выхода антрацена. Конверсионная эффективность относительно антрацена – 0,05–0,5, то есть та же, что и у пластмассовых сцинтилляторов. Время высвечивания меньше, чем у антрацена, и составляет  $10^{-9}$  с.

Жидкостные сцинтилляторы могут изготавливаться больших размеров, так как они имеют хорошую прозрачность, просты и дешевы, пригодны для регистрации всех видов излучений в геометрии 4 $\pi$ . Для регистрации тепловых нейтронов в раствор вводят соединения бора, кадмия, гадолиния и других элементов. Существуют установки на основе жидких сцинтилляторов, позволяющие одновременно производить радиометрию всех видов ионизирующих излучений и гамма-спектрометрию изучаемого образца. Такой подход используется, в частности, для комплексной характеристики радиоактивных отходов неизвестного происхождения.

Газовым сцинтиллятором может являться любой инертный газ, но наибольшим световым выходом обладает ксенон. Световой выход других инертных газов (криптон, неон, гелий и другие) составляет 0,3–0,6 относительно ксенона, а время высвечивания  $10^{-8}$ – $10^{-9}$  с. Газовые сцинтилляторы могут состоять из двухкомпонентной смеси благородных газов – легкого с добавкой тяжелого. С увеличением концентрации тяжелого газа относительный световой выход резко возрастает до максимального значения, затем монотонно падает. Световой выход смеси, состоящей из 90 % гелия и 10 % ксенона, в 1,2 раза больше светового выхода ксенона.

Интенсивность люминесценции резко снижается при загрязнении благородных газов такими примесями, как водород, кислород, углеводороды. Поэтому при использовании газовых сцинтилляторов необходимо предусматривать очистку как люминесцирующего газа, так и камеры заполнения.

При использовании газовых сцинтилляторов необходим смеситель спектра. Для этих целей используются органические сцинтиллирующие соединения (дефинил, стильбен и другие), обладающие высокой конверсионной эффективностью, оптической прозрачностью, химической устойчивостью.

Для расширения спектральной чувствительности в области ультрафиолетового излучения приемное окно ФЭУ изготавливается из кварцевого стекла, пропускающего ультрафиолетовое излучение. При одновременном использовании смесителя спектра и ФЭУ из кварцевого стекла можно получить счетчик с высоким временным разрешением и амплитудой импульса, увеличенной на 30 % по сравнению со стеклянным ФЭУ с использованием кватерфенила.

Амплитуда импульсов газового сцинтиллятора является линейной функцией энергии частиц, не зависящей от массы и заряда частиц.

Газовый сцинтилляционный счетчик представляет собой камеру, заполненную люминесцирующим газом под давлением. На внутреннюю поверхность камеры наносится отражающий слой из окиси магния и слой смесителя спектра. В некоторых случаях смеситель спектра наносится на катод ФЭУ.

Газовые сцинтилляторы рекомендуются для регистрации и спектрометрии тяжелых частиц, продуктов деления, нейтронов и так далее. Эти детекторы незаменимы там, где требуется дискриминация гамма-фона.

#### ***NS4.2.5 Полупроводниковые детекторы***

Развитие полупроводниковых детекторов (ППД) исторически происходило в более поздние сроки, чем газовых и сцинтилляционных детекторов. Это было вызвано, прежде всего, сложностью получения крупных монокристаллов высокого качества для их эффективного использования в спектрометрии ионизирующих излучений. Проблема остается актуальной до сих пор, несмотря на то, что в ее решении достигнут значительный прогресс. В настоящее время является возможным изготовление кристаллов с чувствительным объемом, достигающим десятков и даже сотен кубических сантиметров. При большой плотности вещества (в  $\sim 10^3$  раз выше, чем плотность газов) рабочий объем детекторов позволяет эффективно детектировать не только тяжелые заряженные частицы с энергией в десятки МэВ, но и электроны с энергией до 2 МэВ. Эффективность регистрации  $\gamma$ -излучения у некоторых типов ППД сравнима с эффективностью сцинтилляционных детекторов большого объема. В то же время ППД можно изготовить с очень малым промежутком между электродами, а один из электродов сделать очень тонким. Такой детектор используют для измерения удельных потерь энергии.

Несмотря на то, что полупроводниковые детекторы достаточно широко используются для регистрации и спектрометрии заряженных частиц, нейтронов и фотонов, активное развитие этого метода детектирования связано с решением спектрометрических задач и прежде всего гамма-спектрометрией с высоким разрешением. **Энергетическое разрешение детектора** – это мера его способности различать (разрешать) два результата отклика детектирующей системы на воздействие двух потоков дискретного энергетического излучения близкого друг к другу по энергии. Более подробно возможности и особенности разрешения полупроводниковых детекторов рассмотрены далее в данной главе.

Наконец, важной особенностью полупроводниковых счетчиков являются их малые габариты. Это сильно расширило возможности применения таких детекторов не только в области физического эксперимента, но и в технике – в приборах технологического контроля, а также в медицине.

Полупроводниковые детекторы можно рассматривать как ионизационную камеру с твердым диэлектриком между электродами. Наибольшее распространение получили твердые камеры из полупроводниковых материалов: германия, кремния и CdS. Обычно вместо термина «твердая камера» используют термин «счетчик» или детектор.

Регистрация излучения кристаллическими (или полупроводниковым) счетчиком внешне (если не вдаваться во внутренние процессы, происходящие в самом счетчике) подобна регистрации ионизирующего излучения газовой камерой и сводится к измерению импульсов напряжения, возникающих в результате возрастания проводимости кристалла под действием поступающих в него частиц или фотонного излучения.

Прохождение ионизирующего излучения вызывает в диэлектрике образование разноименных носителей зарядов (электронов и дырок). Внешнее напряжение создает внутри кристалла электрическое поле. Электроны и дырки движутся под действием этого поля к электродам. По мере того, как носители смещаются, они индуцируют на электродах заряд, пропорциональный пройденной ими разности потенциалов. Для того чтобы такая камера с твердым наполнителем работала долго, а сигнал, получаемый на ее выходе, был пропорционален энергии, потерянной заряженной частицей в чувствительном объеме камеры, и, наконец, протяженность сигнала во времени была небольшой, наполнитель должен характеризоваться:

- малой величиной средней энергии, расходуемой заряженной частицей для создания одной пары носителей заряда;
- отсутствием рекомбинации и захвата носителей;
- большой подвижностью носителей заряда обоих знаков;
- большим удельным электрическим сопротивлением.

Необходимость в указанных свойствах объясняется положениями, приведенными ниже.

1. Чем меньше величина средней энергии, затрачиваемой на ионизацию, тем больше носителей возникает в чувствительном объеме, тем больше сигнал, снимаемый с твердотельной камеры, и тем меньше относительная флуктуация этого сигнала, которая определяет предел ее энергетического разрешения. У полупроводниковых детекторов средняя энергия образования пары носителей на порядок меньше, чем у газовых ионизационных камер, и на два порядка меньше, чем у сцинтилляционных счетчиков (кремний – 3,5 эв, германий 2,9 эв).

2. Если вероятность рекомбинации носителей за время их движения велика, то, во-первых, уменьшается собранный заряд и, во-вторых, что более существенно, число носителей, достигших электродов, будет сильно флуктуировать и энергетическое разрешение счетчика ухудшится. Кроме того, при большой вероятности захвата носителей в ловушки внутри диэлектрика возникает объемный заряд, поле которого направлено противоположно внешнему. Объемный заряд возникает еще и потому, что носители зарядов разных знаков до захвата успевают сместиться к электродам в различных направлениях. В итоге, после некоторого периода облучения поле внутри диэлектрика с ловушками может уменьшиться настолько, что счетчик перестанет работать.

3. В твердой камере, так же как и в камере с газовым наполнителем, скорость перемещения носителей (скорость дрейфа) к электродам определяется их подвижностью и пропорциональна напряженности поля в камере. Чем больше подвижность, тем меньше время сбора носителей и тем лучшим разрешающим временем будет обладать твердая камера. Если подвижность положительных и отрицательных носителей равны или близки друг другу, то амплитуда сигнала от такой камеры не будет зависеть от места образования носителей заряда внутри чувствительного объема при любом соотношении между временем сбора носителей и постоянной времени входного каскада усилителя сигнала. Иными словами, будет отсутствовать индукционный эффект.

Для ППД характерны короткий временной фронт сигнала, обеспечивающий временное разрешение порядка нескольких наносекунд, и линейная зависимость амплитуды сигнала от энергии, поглощенной в чувствительном объеме детектора.

4. Поскольку любой материал, который можно использовать в качестве наполнителя твердой камеры, обладает пусть малой, но конечной электропроводностью, то при подаче на электроды камеры разности потенциалов через наполнитель потечет постоянный ток, величина которого пропорциональна электропроводности. Число носителей заряда, перемещающихся между электродами и создающих постоянный ток, испытывает статистические флуктуации, абсолютная величина которых тем больше, чем больше ток. Если флуктуации тока по величине становятся сравнимыми с числом носителей, образованных в камере заряженной частицей, то становится невозможным отличить полезные сигналы от шума.

### ***Свойства полупроводников***

Для объяснения принципов работы полупроводникового детектора необходимо знать основные положения теории переноса заряда в полупроводниках. Как известно, в изолированном атоме любого вещества электроны находятся на определенных энергетических уровнях. В твердом теле атомы находятся на близких расстояниях друг от друга. Энергетические уровни для каждого изолированного атома расщепляются на  $N$  близко расположенных подуровней, так как на движение каждого электрона влияют электрические поля соседних атомов. Такая совокупность близко расположенных энергетических уровней образует зону. При расщеплении валентных уровней соответствующая им зона называется валентной. Электроны с энергией, соответствующей такой зоне, принадлежат всему кристаллу в целом, а не отдельному атому. Следующая зона, в которой электроны еще менее чем в валентной зоне связаны с атомами кристалла, называется зоной проводимости. Схема расположения этих зон показана на рис. 4.2.20.

Структура этих зон и степень заполнения их электронами определяет электрические свойства вещества. Так, в металлах валентная зона перекрывается с зоной проводимости. Под действием внешнего электрического поля электрон в зоне проводимости не будет перемещаться как свободная частица, так как подвержен действию периодического поля ионных остовов кристалла и электрических полей других электронов. В зависимости от величины его импульса и от направления движения, внешнее поле в совокупности с

внутренними полями может ускорить (или замедлить) электрон сильнее, чем только одно внешнее поле. Электрон может рассматриваться как свободный, но имеющий некоторую эффективную массу, меньшую (или большую) массы свободной частицы. То есть в рассмотрении вводится представление об электроны как о квазичастице с некоторой эффективной массой.

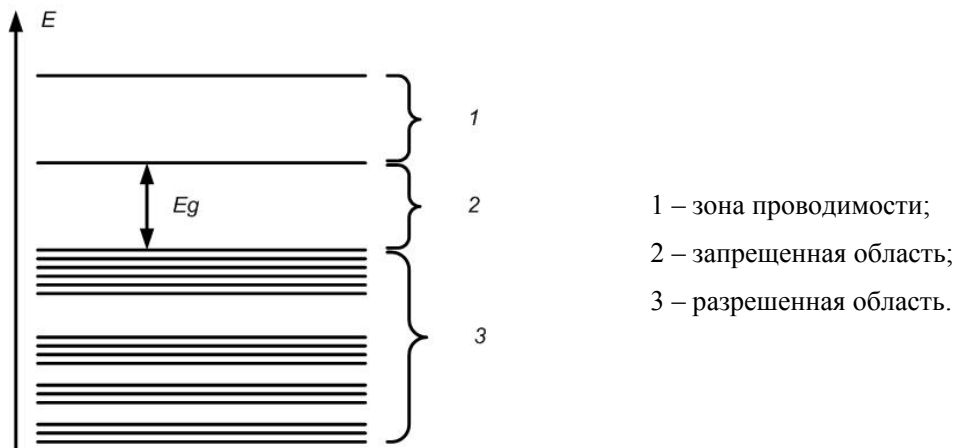


Рис. 4.2.20. Схема расположения энергетических зон в полупроводнике

В диэлектриках зона проводимости и валентная зона разделены энергетическим зазором  $E_g$  (запрещенная зона). Валентная зона заполнена полностью, а в зоне проводимости электроны отсутствуют. Если ширина запрещенной зоны больше 2 эВ (по некоторым источникам 3 эВ), то вещество считается изолятором, а если меньше 2 эВ, то полупроводником.

Для моделирования процесса образования тока может рассматриваться один из чистых, не имеющих нарушений кристаллической решетки и примесей полупроводник, например, кремний. Для кремния ширина запрещенной области  $E_g=1,09$  эВ. При температуре  $T=0^\circ\text{K}$  в кремнии валентная зона заполнена полностью, а в зоне проводимости электронов нет, то есть он является изолятором. При повышении температуры за счет теплового движения валентные электроны могут приобрести энергию, достаточную для преодоления энергетической щели  $E_g$ , и перейти в зону проводимости. Вероятность такого перехода экспоненциально возрастает с уменьшением ширины запрещенной зоны. Такая проводимость называется собственной, в отличие от примесной, о которой будет рассказано далее. Необходимо также отметить, что в полупроводнике при температуре  $T>0$  носителями тока будут как электроны, находящиеся в зоне проводимости, так и электроны, находящиеся в валентной зоне. Последнее возможно потому, что после переброски электрона в зону проводимости, в валентной зоне остаются незаполненные места – дырки. Электроны, находящиеся вблизи верхней границы или потолка валентной зоны, получают возможность перемещаться под действием электрического поля, внося вклад в ток. Электропроводность будет тем больше, чем больше дырок в валентной зоне. Удобнее вместо движения электронов валентной зоны рассматривать движение квазичастиц – дырок, приписывая им положительный заряд, равный по абсолютной величине заряду электрона, и массу, близкую к массе свободного электрона. Такую проводимость называют дырочной или  $p$ -проводимостью (от английского слова positive). Обычную или электронную проводимость называют  $n$ -проводимостью (от negative). Таким образом, носителями тока в полупроводнике являются электроны в зоне проводимости и дырки в валентной зоне. При обратном переходе электрона в валентную зону вакантный уровень заполняется, что эквивалентно процессу уничтожения или рекомбинации пары.

Проводимость, о которой шла речь выше, называют собственной проводимостью полупроводника или проводимостью  $i$ -типа, а сам полупроводник – полупроводником  $i$ -типа. Полупроводником  $i$ -типа является идеальный кристалл без примесей чужеродных атомов и

нарушений в структуре кристаллической решётки. Число электронов и равное ему число дырок при комнатной температуре, например в кремнии, составляет порядка  $10^{10} \text{ см}^{-3}$ . Такая концентрация носителей заряда обусловлена двумя конкурирующими процессами – переходом электронов в зону проводимости и рекомбинацией пар.

Для изготовления ППД используются в основном кремний и германий – четырёхвалентные элементы с простой структурой кристаллической решётки и ковалентными связями, полностью насыщенными при низкой температуре. Для этих кристаллов характерна малая ширина запрещённой зоны  $E_g$  и сравнительно высокая подвижность электронов и дырок. Некоторые характеристики чистых (беспримесных) кремния и германия приведены в таблице 4.2.2.

Таблица 4.2.2. Характеристики беспримесного кремния и германия

Характеристика	Кремний	Германий
Атомный номер, $Z$	14	32
Плотность, $\text{г/см}^3$	2,33	5,33
Ширина запрещенной зоны $E_g$ , эВ	1,1	0,67
Средняя энергия образования пары носителей $\omega$ , эВ	3,7	3,0
Плотность собственных носителей при $T=300 \text{ К}$ , $\text{см}^{-3}$	$1,5 \cdot 10^{10}$	$2 \cdot 10^{13}$
Подвижность электронов, $\text{см}^2/\text{В} \cdot \text{с}$ при $T=300 \text{ К}$	$1,6 \cdot 10^3$	$3,9 \cdot 10^3$
при $T=77 \text{ К}$	$5 \cdot 10^4$	$4 \cdot 10^4$
Подвижность дырок, $\text{см}^2/\text{В} \cdot \text{с}$ при $T=300 \text{ К}$	$4,8 \cdot 10^2$	$1,9 \cdot 10^3$
При $T=77 \text{ К}$	$2 \cdot 10^4$	$4 \cdot 10^4$
Удельное сопротивление, $\text{Ом} \cdot \text{см}$ при $T=300 \text{ К}$	$240 \cdot 10^3$	65

В реальном кристалле всегда имеются примеси. Из кремния особенно трудно удалять бор, германий очень сложно очищать от кислорода. При изготовлении ППД примеси вводят искусственно, используя для этого атомы пятивалентных (фосфор, мышьяк, рис. 4.2.21) или трёхвалентных (бор, алюминий) химических элементов. Это делается для создания так называемой «примесной» проводимости. Если в чистый полупроводник, например, кремний, ввести атом другого вещества, имеющий большую валентность (например, фосфор), то такой атом, заместив в кристаллической решетке атом кремния, принесёт с собой в кристалл добавочный («лишний») электрон. Четыре валентных электрона фосфора размещаются в валентной зоне кремния, тогда как пятому электрону, оставшемуся связанным с атомом примеси, отвечает локальное энергетическое состояние, расположенное в запрещённой зоне. Такой электрон оказывается слабо связанным с атомом примеси, а его энергетический уровень, называемый донорным, находится вблизи зоны проводимости, как это показано на рис. 4.2.22. Разность между образовавшимся таким образом уровнем в атоме донорной примеси и нижней границей зоны проводимости составляет всего около  $dE_d \sim 0,05 \text{ эВ}$ .

Даже при низкой температуре электрон с донорного уровня легко переходит в зону проводимости, не образуя дырок в валентной зоне, поскольку освободившийся уровень связан с закреплённым в решетке ионизированным примесным атомом. При увеличении концентрации электронов в зоне проводимости увеличивается вероятность их обратного перехода в валентную зону, то есть вероятность рекомбинации, что приводит к уменьшению концентрации дырок в валентной зоне. Получается так называемый  $n$ -кремний, в котором проводимость практически полностью обусловлена электронами.

Аналогичная картина получается при изготовлении полупроводников с  $p$ -типом проводимости. Для этого в чистый полупроводник вводят инородные атомы, имеющие меньшее число валентных электронов, чем у исходного вещества. Такой атом примеси захватывает из валентной зоны электрон на акцепторный уровень, расположенный в запрещенной зоне вблизи потолка валентной зоны. Подобные вакантные уровни способны не только захватывать электроны, но и удерживать их в течение довольно длительного времени. В результате в полупроводнике образуется дырка без образования второго носителя заряда – свободного электрона.

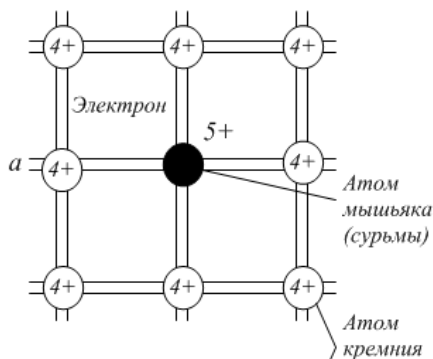


Рис. 4.2.21. Схема легирования полупроводника донорной примесью

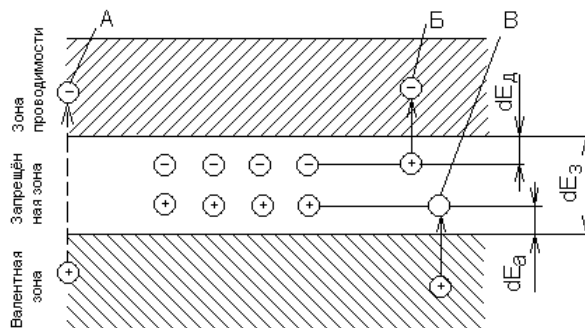


Рис. 4.2.22. Схема образования донорных и акцепторных энергетических уровней в полупроводнике и механизм протекания тока в них

В реальном полупроводнике обычно имеются примеси как донорного, так и акцепторного типов. Если преобладающей является донорная примесь, то  $n_n > n_p$ . В таком полупроводнике электроны являются основными носителями, дырки – неосновными, а сам полупроводник называется полупроводником  $n$ -типа. Если же преобладающей является акцепторная примесь, то  $n_p > n_n$ , а основными носителями являются дырки – это полупроводник  $p$ -типа.

Даже небольшое количество донорной или акцепторной примеси значительно уменьшают удельное сопротивление полупроводниковых кристаллов, так как при этом увеличивается количество носителей зарядов. Например, если в беспримесный кремний при комнатной температуре добавить по одному атому примеси на  $3 \cdot 10^{11}$  атомов кремния, то его удельное сопротивление уменьшится на два порядка. Сопротивление кристалла является параметром, определяющим возможность его использования в качестве детектора. При подаче на электроды, между которыми находится полупроводник, даже небольшого напряжения по цепи потечёт постоянный ток, пропорциональный проводимости кристалла. Число носителей электрических зарядов, участвующих в образовании постоянного тока, испытывает статистические флуктуации. В связи с этим будут иметь место флуктуации выходного сигнала (собственный шум ППД) независимо от того, прошла через счётчик частица или нет. Если амплитуда этих флуктуаций сравнима с числом носителей, образованных заряженной частицей, то становится невозможным отличить полезный сигнал от шума. Очевидно также, что наличие шума ухудшает энергетическое разрешение детектора. Флуктуации темнового тока тем меньше, чем меньше сам ток. Поэтому кристалл должен иметь большое сопротивление – концентрация свободных носителей заряда в нём должна быть минимально возможной.

### Принципы создания собственной ( $i$ ) проводимости в кристаллах

Беспримесные кремний и германий не могут быть использованы в качестве детекторов из-за низкого удельного сопротивления при комнатной температуре. При охлаждении до температуры жидкого азота  $77^\circ\text{K}$  плотность собственных носителей в германии и кремнии становится очень малой. Следовательно, при глубоком охлаждении они могли бы с успехом использоваться для создания детекторов. Однако техника очистки германия и кремния не может обеспечить концентрацию атомов электрически активных примесей менее чем один атом на примерно  $5 \cdot 10^{10}$  атомов основного материала. Поэтому даже при глубоком охлаждении сопротивление примесных полупроводников определяется только примесями и из-за малой энергии активации примесных уровней сопротивление примесного полупроводника остаётся недостаточно высоким.

Увеличение сопротивления примесного полупроводника возможно либо за счёт увеличения степени очистки, что связано с очень большими техническими трудностями, либо



путём компенсации примесной проводимости введением другой примеси с противоположной проводимостью. Например, в кристалл  $n$ - типа можно ввести атомы с акцепторными свойствами. При правильно подобранной концентрации акцепторов в кристалле  $n$ -типа почти все электроны, потерянные донорами, будут уловлены акцепторами. После этого, примесной кристалл становится кристаллом  $i$ - типа, в котором концентрация свободных носителей зарядов близка к таковой в беспримесном кристалле. Такой полупроводник называют «скомпенсированным». Его удельное сопротивление близко к сопротивлению абсолютно чистого кристалла, но не может его превзойти.

На практике используют ППД, кристаллы которых имеют комбинированные участки с  $n$  - и  $p$  - проводимостью. Их сочетание позволяет получить  $n-p$  – переход, пропускающий ток в одном направлении и препятствующий его прохождению в противоположном. Если взять пластинку монокристалла кремния, у которого левая часть содержит донорную, а правая акцепторную проводимость примеси, то на их границе образуется  $(n-p)$  переходный запирающий слой. Образование его обусловлено диффузией как дырок из  $p$  - области в  $n$  - область, так и электронов из  $n$  - области в  $p$  - область. Переходя в  $n$  - область, дырки накапливаются вблизи границы двух областей, происходит рост положительного потенциала. Накапливание электронов по другую сторону границы  $p$  - области приводит к росту отрицательного потенциала. В некоторый момент времени диффузия носителей заряда прекращается и на границе  $n$  - и  $p$  - областей возникает слой, образованный пространственным зарядом дырок в  $n$  - области и электронов в  $p$  - области. В  $p$  - области вблизи ее границы с  $n$  - областью скапливаются отрицательные заряды, вследствие чего происходит обеднение основными носителями – дырками, а в  $n$  - области (вблизи границы с  $p$  - областью) скапливаются положительные заряды, в результате чего происходит обеднение электронами  $n$  - области. Обедненная основными носителями область называется запирающим слоем, или потенциальным барьером.

Если на  $(n-p)$ -переход подключить обратное внешнее электрическое напряжение, то есть к  $p$  - области подать отрицательное напряжение, а к  $n$  - области – положительное (такое подключение называется инверсионным), то сопротивление  $(n-p)$ -перехода еще больше возрастет, так как приложенное напряжение будет способствовать удалению зарядов друг от друга. При этом в кристалле устанавливается постоянное распределение поля. Падение приложенного напряжения будет происходить в основном на обедненном слое. В результате обедненную носителями область можно рассматривать как твердую ионизационную камеру.

Основными физическими характеристиками полупроводникового детектора являются: ширина обедненной области (слоя)  $d$ , от величины которой зависит чувствительный объем и время собирания носителей; удельное сопротивление  $\rho$  полупроводника  $(n-p)$ -перехода; емкость обедненной области  $C$ ; обратный ток, определяющий уровень шумов.

Другой способ создания материала с собственной проводимостью – легирование. Введение легирующих элементов – акцепторов позволяет компенсировать проводимость, обусловленную наличием примесей. Для легирования используют литий – элемент первой группы периодической системы элементов Д.И. Менделеева, имеющий большую подвижность. Атом лития находится в ионизированном состоянии и может дрейфовать. Для компенсации примесной проводимости кремний и германий в ППД в кристалл с  $p$  - проводимостью вводят литий методом высокотемпературной диффузии. При этом верхний пограничный слой перекомпенсируется литием. Этот слой кристалла становится материалом с  $n$  - проводимостью. В результате дрейфа лития вглубь полупроводникового материала в нем создается промежуточный слой с  $i$ - проводимостью, характеризующийся собственной проводимостью материала. После диффузии лития к центру материала создается чередующаяся структура слоев с  $n$  -,  $i$  - и  $p$  - проводимостью.

### **Типы полупроводниковых детекторов**

Хорошие параметры полупроводниковых детекторов, реализация которых стала возможной после создания малошумящей и высокостабильной электронной аппаратуры и разработки специальных систем охлаждения и вакуумирования, позволяют широко применять их почти во всех областях ядерной физики.

В зависимости от параметров и технологии изготовления полупроводниковые электронно-дырочные детекторы делятся на поверхностно-барьерные (например, Au-Si); диффузионные с ( $n-p$ ), ( $p-n$ ) переходами; диффузионно-дрейфовые с ( $n-i-p$ ) переходами. К последнему типу относятся также детекторы из особо чистого германия (HpGe), которые иногда выделяют в отдельную группу.

Поверхностно-барьерные детекторы изготавливаются таким образом, чтобы вблизи поверхности кристалла из кремния или германия сформировался ( $n-p$ ) или ( $p-n$ ) переход. Это осуществляется двумя основными способами. Во-первых, используется поверхностная диффузия вещества одного типа внутрь кристалла из материала другого типа (например, диффузия фосфора в кристалл кремния  $p$ -типа). Во-вторых, можно использовать химические свойства поверхности кремния или германия. Поверхностный слой этих элементов легко окисляется и ведет себя как электронный акцептор ( $p$ -слой). Электрический контакт с поверхностным слоем осуществляется с помощью тонкого слоя металла, обычно золота, который наносится на поверхность кристалла испарением в вакууме. Такие золото-кремниевые и золото-германиевые счетчики широко используются для регистрации и спектрометрии тяжелых заряженных частиц и нейтронов. Золото-кремниевые детекторы используются в условиях комнатной температуры.

В диффузионных детекторах переход обычно получают путём компенсации примесной  $p$ -проводимости кремния диффузией в него донорных атомов (обычно фосфора). По характеристикам и области применения они близки к поверхностно-барьерным детекторам и также работают при комнатной температуре. Диффузионные детекторы в настоящее время не имеют широкого применения и поэтому в рамках данного курса не рассматриваются.

Диффузионно-дрейфовые  $n-i-p$  детекторы (например, Ge(Li)) могут быть изготовлены благодаря уникальному поведению ионов лития в кристаллах. Ионы лития, имея малые размеры, легко диффундируют внутрь кремния и германия, располагаясь не в узлах решётки, а между узлами. Коэффициент их диффузии в германий, например, в  $10^7$  раз больше, чем у обычных доноров. Для того чтобы внедрить в структуру кристалла, на поверхность  $p$ -полупроводника напыляют литий, который при нагревании до температуры около  $400^\circ\text{C}$  диффундирует на глубину примерно 0,1 мм, образуя тонкий высоколегированный  $n^+$ -слой. Затем к этому  $p-n$ -переходу прикладывается напряжение (плюс к  $n$ -слою), под действием которого происходит управляемая диффузия ионов лития в  $p$ -полупроводник до тех пор, пока количество ионов лития не станет точно равным количеству акцепторных атомов (это обычно бор). Противоположная поверхность легируется атомами бора с энергией  $\sim 10$  кэВ, в результате чего образуется тонкий  $p^+$ -слой с высокой проводимостью. Поверхностные  $p^+$ - и  $n^+$ -слои служат электродами. Между ними располагается чувствительная область полностью скомпенсированного полупроводника, удельное сопротивление которого равно сопротивлению чистого кристалла.

Основные типы диффузионно-дрейфовых детекторов, в зависимости от формы и технологии изготовления, делят на планарные и коаксиальные (с одним и двумя открытыми концами) рис. 4.2.23.

Если некомпенсированная область с  $p$ -проводимостью проходит через центральную часть цилиндрического детектора, то ППД называют детектором с двумя открытыми концами. Если литий вводят через одну торцевую поверхность, то получают детектор с чувствительной частью, охватывающей некомпенсированную  $p$ -область с боков и сверху. Детекторы с одним открытым концом наиболее распространены. Они имеют большой объем чувствительной области.

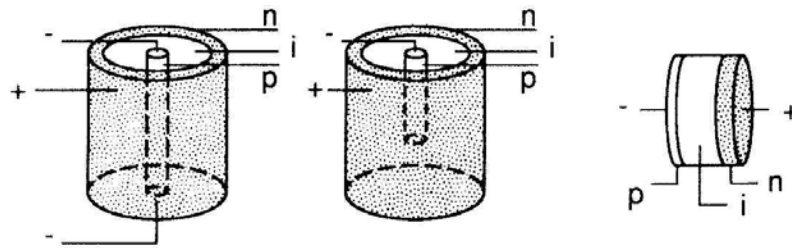


Рис. 4.2.23. Основные типы диффузионно-дрейфовых детекторов (слева на право): коаксиальный с двумя открытыми концами; коаксиальный с одним открытым концом; планарный.

Планарные ППД получают в результате проведения высокотемпературной диффузии лития в поверхностный слой заготовки ППД и последующего дрейфа ионов лития вглубь материала заготовки. Эти детекторы характеризуются высокой однородностью электрического поля и, как следствие этого, высокой эффективностью сбора носителей заряда. Именно этот фактор обуславливает то, что с использованием таких детекторов были получены наилучшие значения энергетического и временного разрешения, близкие к своему теоретическому пределу. Площадь чувствительной поверхности  $S$  таких детекторов может достигать  $12\text{--}16\text{ см}^2$ , а толщина чувствительной области  $W=15\text{--}20$  мм. Электрическую емкость планарного детектора можно оценить по формуле:

$$C_{пл.} = \varepsilon S / 4\pi W, \quad (4.2.23)$$

где  $\varepsilon$  – диэлектрическая проницаемость полупроводникового материала (для Ge  $\varepsilon=16$ , для Si  $\varepsilon=12$ ).

В отличие от планарных коаксиальные детекторы обладают существенно большими размерами чувствительной области, которая может достигать сотен кубических сантиметров, а значит и большей эффективностью регистрации излучения.

Коаксиальный детектор имеет по сравнению с планарным существенную неоднородность электрического поля, напряженность которого в пределах чувствительной области может различаться в несколько раз. Этим объясняется то, что временные свойства коаксиальных детекторов хуже, чем свойства планарных, в несколько раз. Вследствие большого разброса времени сбора носителей, образованных в чувствительной области ППД, амплитуда сигнала на выходе усилительного тракта претерпевает относительно большие флуктуации. В итоге ухудшаются рабочие характеристики детектора, в частности – энергетическое разрешение. Толщина чувствительной области определяется глубиной дрейфа ионов лития, и, как и у планарных детекторов, составляет  $15\text{--}20$  мм. Электрическая емкость  $C_k$  коаксиального детектора с двумя открытыми концами оценивается по формуле:

$$C_k = \varepsilon h / 2 \ln(R/r), \quad (4.2.24)$$

где  $h$  – высота (длина) заготовки ППД;

$R$  – радиус внешней поверхности, ограничивающей  $i$ -область ППД;

$r$  – радиус внутренней поверхности, ограничивающей  $i$ -область ППД.

Электрическую емкость коаксиального детектора с одним концом (рис. 4.2.21) можно рассматривать как суперпозицию емкостей коаксиального детектора с двумя открытыми концами и планарного.

$$C = C_{пл.} + C_k. \quad (4.2.25)$$

Существуют также другие типы ППД: детекторы с «колодцем»; полутороидальные; детекторы, изготовленные по U-образной технологии; полусферические. Детектор с «колодцем» обладает рядом преимуществ, так как его использование предполагает размещение пробы в колодце, сделанном в самом детекторе. Поэтому геометрия измерений оказывается близка к  $4\pi$ , однако размеры такой пробы ограничиваются размерами колодца.

Детекторы коаксиальной конфигурации, несмотря на большой объем чувствительной области, имеют, тем не менее, довольно низкий коэффициент использования полупроводникового материала. Этого недостатка при большом объеме чувствительной

области лишены детекторы, изготовленные по так называемой U-образной технологии. Сущность изготовления такого ППД следующая: на брусок германия  $p$  - типа наносят литий на три соседние стороны. В процессе дрейфа ионов лития получается конфигурация похожая на конфигурацию «полукоаксиального» детектора. В результате последующих операций с боковых поверхностей заготовки стравливают  $n$  - слой (продолжается дрейф для подавления и выравнивания  $p$  - гребня). Получившийся детектор имеет структуру, близкую к планарной, с тем лишь различием, что  $i$ - области могут составлять 20–30 мм. Такие детекторы имеют наивысшие коэффициенты использования материала и при достаточно большом объеме чувствительной области обладают высокой однородностью электрического поля.

В последнее время, в связи с развитием соответствующей технологии производства, большее распространение получают полупроводниковые детекторы на основе кристаллов из особо чистого германия (HrGe). Технология их изготовления подобна изготовлению Li-дрейфовых детекторов, исключая стадию дрейфа Li вглубь  $p$  - кристалла. В них между поверхностными  $n^+$ - и  $p^+$ - слоями – электродами находится не скомпенсированный литием германий, а очень чистый германий с концентрацией примесей около  $10^{10} \text{ см}^{-3}$ . При такой концентрации примесей и при охлаждении до температуры жидкого азота сопротивление полупроводника возрастает настолько, что становится возможным создание ППД. Максимально допустимая концентрация атомов примесей в германии, при которой ещё можно изготовить ППД без компенсации, составляет  $3 \cdot 10^{10} \text{ см}^{-3}$ . HrGe- детекторы отличаются исключительно малым уровнем токов утечки (около  $10^{-11} \text{ А}$ ; см. определение для термина «ток утечки» далее в подразделе «флуктуации токов утечки») и высоким энергетическим разрешением.

Кремниевые детекторы могут работать без охлаждения, при этом энергетический эквивалент шума составляет несколько десятков кэВ. Германиевые детекторы должны эксплуатироваться при низкой температуре. Это связано с тем, что ширина запрещенной зоны  $E_g$  германия заметно меньше, чем у кремния (0,66 эВ у германия и 1,09 эВ у кремния). В связи с этим вероятность тепловой генерации неосновных носителей заряда у германия существенно выше, и при комнатной температуре токи утечки недопустимо велики. Хранение при низкой температуре необходимо для диффузионно-дрейфовых  $n-i-p$  детекторов, чтобы предотвратить необратимый процесс выхода лития из его объёма. Такой выход является следствием того, что его в германий внедряется больше, чем должно быть в равновесном растворе. Дрейф лития через поверхность кристалла является необратимым и поэтому нагретый до комнатной температуры  $n-i-p$  диффузионно-дрейфовый детектор очень быстро теряет свои полупроводниковые свойства и выходит из строя. Одним из существенных преимуществ HrGe-детекторов перед аналогичными диффузионно-дрейфовыми Ge(Li)- детекторами является возможность хранения их при комнатной температуре в период между измерениями, хотя при работе они также должны быть охлаждены до температуры жидкого азота.

#### **Флуктуации токов утечки**

Проводимость переходной области полупроводника, к которой приложено напряжение смещения, отлична от нуля. Поэтому через нее протекает ток, который принято называть **током утечки**. Флуктуации количества носителей заряда в этой области, возникающие при тепловой генерации, приводят к флуктуациям тока. Кроме того, из-за разной концентрации электронов и дырок в  $n$  – и  $p$  – областях возникает диффузионный ток через ( $n-p$ )- переход. Последний примерно на два порядка меньше тока генерации.

Помимо объёмных токов утечки по боковым поверхностям кристалла протекают поверхностные токи утечки, зависящие от качества изготовления ППД.

Тепловые шумы и токи утечки, следовательно, и энергетическое разрешение детектора зависят от температуры. На рис. 4.2.24 приведена зависимость от температуры разрешения  $\gamma$  - спектрометра с детектором из особо чистого германия (HrGe-детектор). Резкое ухудшение разрешения при температуре выше 150 К обусловлено ростом тока утечки. На рис. 4.2.25 показана зависимость разрешения этого детектора от напряжения смещения. Подъём кривых в

области малых напряжений объясняется увеличением ёмкости детектора, а в области больших напряжений – ростом токов утечки.

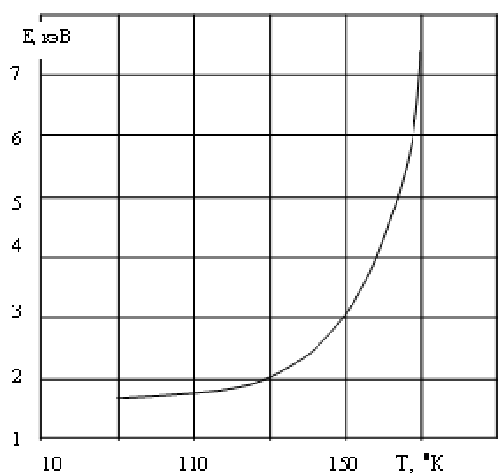


Рис. 4.2.24. Зависимость энергетического разрешения полупроводникового детектора от температуры

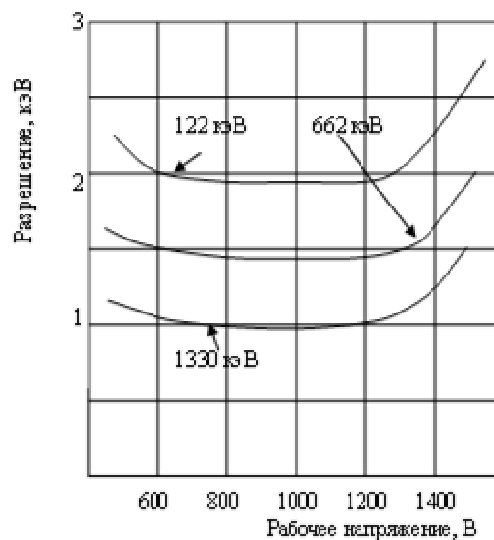


Рис. 4.2.25. Зависимость разрешения HPGe-детектора от напряжения

Шумы предусилителя в основном определяются головным (первым) каскадом, для построения которого обычно применяют полевые транзисторы. Для уменьшения шумов зачастую предусилитель монтируют совместно с детектором, охлаждают и вакуумируют. Несмотря на эти меры, шумы вносят существенный вклад в энергетическое разрешение при спектрометрии рентгеновского излучения с энергией несколько кэВ.

#### **Общий отклик детектора на воздействие фотонов гамма-излучения**

Большинство ядерных и радиоактивных материалов являются гамма-излучателями (см. раздел 4.5.2). Фотоны гамма-излучения излучаются ими в виде дискретного спектра, что позволяет (в отличие от бета-частиц) проводить анализ смеси большого числа радионуклидов с определением характеристик каждого из них в смеси. Однако проведение подобного анализа возможно только при высокой разрешающей способности регистрирующей системы (см. далее раздел «Разрешение детектора»). Высокое разрешение регистрирующей системы обеспечивается, чаще всего, путем использования полупроводниковых детекторов. Разрешение детектора, в свою очередь определяется функцией его отклика на внешнее воздействие, которая обсуждается в данном подразделе.

Независимо от типа используемого полупроводникового детектора, измеренные спектры имеют много общих черт. Фотоны гамма-излучения возникают в ядерных переходах, которые сопровождаются специфическими изменениями энергии. Поэтому идеальный отклик детектора должен представлять бесконечно тонкие импульсы прямоугольной формы. На практике этого не происходит по целому ряду причин. Во-первых, небольшое уширение функции отклика прибора (называемая далее по тексту пиком) вызвано такими эффектами как квантовая неопределенностей в энергиях переходов (так называемая неопределенность Гейзенберга) и отдача ядер при испускании фотонов гамма-излучения. Эти неопределенности являются конечными, однако они незначительны по сравнению с другими эффектами энергетического расширения спектра, обсуждаемыми ниже. 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 исходная ( $E_0$ ), а энергетический спектр фотонов, испущенных из образца материала, слегка расширен в энергетической области ниже  $E_0$ . Величина этого расширения также невелика. 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.

Когда гамма-квант попадает в детектирующую среду, он передает часть или всю свою энергию атомному электрону, высвобождая электрон из его атомной оболочки (см. раздел NS.PR 2.3 курса «Основы ядерной физики»). 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 импульс. 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. Максимальная энергия, которая может быть оставлена в детектирующей среде в результате комптоновского рассеяния, соответствует рассеиванию фотона на угол  $180^\circ$ . Таким образом, импульсы детектора, образованные от комптоновского рассеяния, распределены в области ниже этой максимальной энергии и составляют источник "фоновых" импульсов, которые не содержат полезной информации об энергии фотона.

Пик полного поглощения значительно расширен вследствие статистических флуктуаций количества пар электрон-ион, образованных фотоэлектронном. Такой эффект вносит основной вклад в ширину пика полного поглощения и, тем самым, является доминирующим фактором, определяющим энергетическое разрешение детектора (см. далее по тексту раздела).

Реалистичное представление гамма-спектра, образованного детектором от потока моноэнергетических гамма-квантов, показано на рис. 4.2.26. Спектральные характеристики, отмеченные на рисунке буквами от А до Ж, описаны ниже.

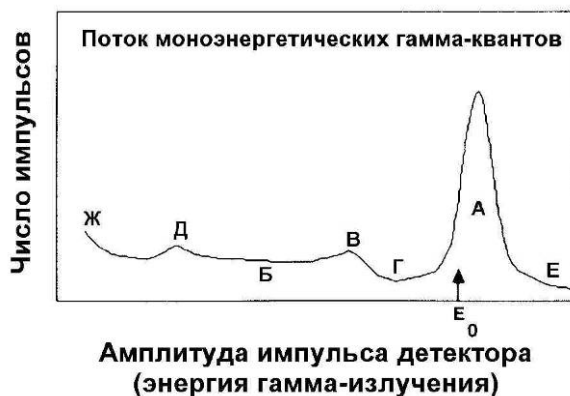


Рис. 4.2.26. Схема разбиения спектра моноэнергетического излучения в полупроводниковом детекторе на области

#### 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. Центроида пика соответствует энергии фотона  $E_0$ .

Площадь пика за вычетом фона представляет полное число взаимодействий с полной потерей энергии в детекторе и обычно пропорциональна массе излучающего изотопа.

#### *Б. Континуум комптоновского фона*

Эти импульсы, гладко распределенные до максимальной энергии  $E_c$ , 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  $180^\circ$ .

#### *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. Не рассеянные фотоны моноэнергетического источника не могут образовывать импульсы в этой области в результате однократного взаимодействия в детекторе. В более сложных спектрах эта их часть 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.

#### *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, а также событиями наложения импульсов, если скорость счета достаточно высока. 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 воспринимается 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, 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.

### ***Разрешение детектора в гамма-спектрометрических измерениях***

**Энергетическое разрешение детектора в гамма-спектрометрических измерениях** – это мера его способности различать (разрешать) два пика, которые близки друг к другу по энергии. В гамма-спектрометрических измерениях параметром, используемым для указания разрешения детектора, является полная ширина фотопика (пика полного поглощения) на половине его высоты ПШПВ. Если предположить, что фотопик имеет стандартную форму распределения Гаусса, что наблюдается в случае использования гамма-спектрометрической

системы, имеющей высокую загрузку (см. подраздел «Временные характеристики спектрометра»), то его полуширина дается уравнением:

$$\text{ПШПВ} = 2\sigma\sqrt{\ln(2)}, \quad (4.2.26)$$

где  $\sigma$  – 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 тому подобное. Эти электронные эффекты стали менее важными с усовершенствованием технологии, но их возможное влияние на разрешение должно учитываться при установке и настройке измерительной системы. Изучение вопросов, связанных с влиянием электронных эффектов и окружающей среды на разрешение детектора не входит в содержание курса NS4 и может быть изучено самостоятельно по материалам, приведенным в перечне использованной для создания курса литературы.

В применениях неразрушающего гамма-анализа наиболее широко используются два типа детекторов: сцинтиляционный NaI(Tl) и германиевый твердотельный. Пики полного поглощения, образованные детектором NaI(Tl), гораздо шире, чем образованные германиевым детектором. Это проиллюстрировано на рис. 4.2.27, где множество деталей, присутствующих в спектре гамма-излучения плутония, полученном с помощью германиевого детектора, потеряно в соответствующем спектре от детектора NaI(Tl).

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 энергии  $E$  и среднего количества энергии  $\delta$ , необходимого для образования пары электрон-ион:

$$n = E / \delta. \quad (4.2.27)$$

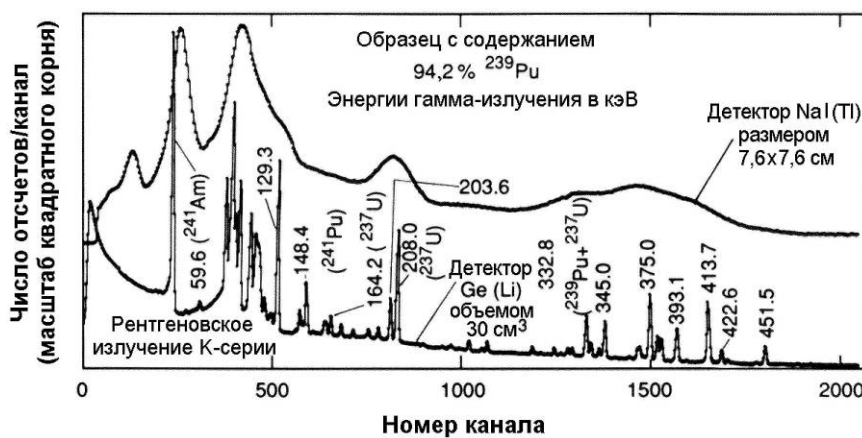


Рис. 4.2.27. Спектр гамма-излучения плутониевого образца с содержанием ( $^{239}\text{Pu}$  94,2%), полученный с использованием полупроводникового Ge(Li) высокого разрешения и NaI детектора

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:



$$\sigma^2(n) = Fn = FE / \sigma. \quad (4.2.28)$$

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 ( $F=1$ ). Для сцинтилляторов коэффициент  $F$  приблизительно равен единице. Для германия, кремния и газов он составляет приблизительно 0,15. Поскольку число носителей заряда  $n$  пропорционально потерянной энергии фотона, то статистическая доля относительного энергетического разрешения дается выражением:

$$\Delta E_{\text{стат.}} / E = 2,35\sigma(n)/n = 2,35(F\delta/E). \quad (4.2.29)$$

В табл. 4.2.3 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:

$$\Delta^2 E_{\text{полн.}} = \Delta^2 E_{\text{электрон.}} + \Delta^2 E_{\text{стат.}}. \quad (4.2.30)$$

На рис. 4.2.28 сравниваются энергетические разрешения сцинтилляционного, газового и твердотельного детекторов в низкоэнергетическом рентгеновском диапазоне.

Таблица 4.2.3. Теоретическое статистическое энергетическое разрешение для различных типов детекторов гамма-излучения

Детектирующая среда	Средняя энергия $\delta$ , эВ	Число электронов $n$ при 300 кэВ**	Энергетическое разрешение***, кэВ	Высокоэнергетическое разрешение****, кэВ
Ge	2,96	$1,0 \cdot 10^5$	0,86	1,6
Газ	30,00	$1,0 \cdot 10^4$	2,73	-
NaI	_******	$1,0 \cdot 10^3$	22,6	30,0
BGO*****	_******	$1,0 \cdot 10^1$	77,6	100,0

\*) – средняя энергия, необходимая для образования одной пары электрон-ион в детектирующей среде;

\*\*) – отношение  $E/\delta$  для  $E=300$  кэВ;

\*\*\*) – статистическая доля энергетического разрешения  $\Delta E_{\text{стат.}}$  из уравнения (4.2.46).

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 ( $^{60}\text{Co}$ ). Значения для газонаполненных детекторов не показаны, поскольку они не эффективны для спектрометрии при таких высоких энергиях;

\*\*\*\*\*) – поскольку измеренный заряд собирается в сцинтилляционных детекторах не прямым путем, эта величина к делу не относится; типичное число электронов, образованных на фотокатоде фотоумножителя на кэВ для NaI взято из литературных данных, а число электронов для BGO получено на том основании, что его эффективность сцинтилляции составляет приблизительно 8 % от эффективности NaI;

\*\*\*\*\*) – BGO – детектор на основе кристалла германата висмута.

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 неразрушающего анализа, 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.

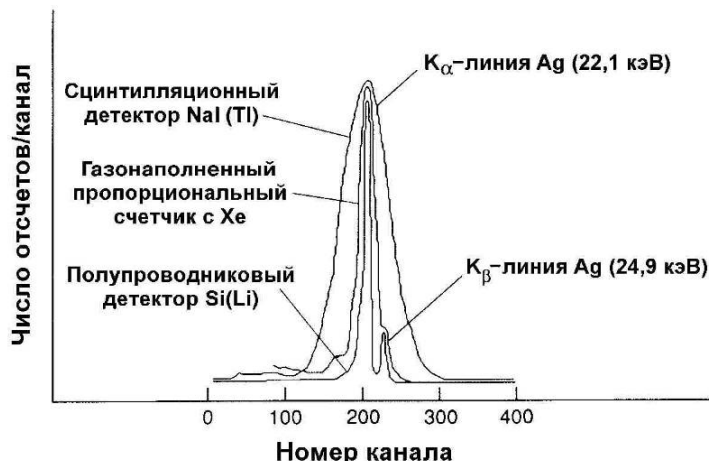


Рис. 4.2.28. Разрешение сцинтилляционного детектора  $NaI(Tl)$ , газового пропорционального счетчика и полупроводникового детектора  $Si(Li)$  для первичного рентгеновского излучения серебра.

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. Обычно наблюдается, что значительное ухудшение рабочих характеристик детектора начинается с флюенса нейтронов приблизительно  $10^9$  н/см<sup>2</sup>, и детекторы становятся непригодными к использованию при флюенсе приблизительно  $10^{10}$  н/см<sup>2</sup>. Современные детекторы из особо чистого кремния значительно менее подвержены повреждению нейтронами. Существуют процедуры, с помощью которых эффекты радиационного повреждения могут быть устранены посредством нагревания (отжига) кристалла детектора.

#### **Материалы полупроводниковых детекторов**

Наибольшее распространение имеют детекторы на основе германия. Это обусловлено тем, что большая часть измерений ядерных и радиоактивных материалов относятся к области гамма-спектрометрии. Германиевые детекторы наиболее удобны, по своим характеристикам, для подобного рода анализов. Основное отличие детекторов  $\gamma$ -излучения от детекторов заряженных частиц состоит в том, что заряженная частица, попавшая в чувствительный объем детектора, регистрируется, как правило, с вероятностью, равной единице, тогда как вероятность регистрации фотонов  $\gamma$ -излучения значительно меньше единицы. Эта вероятность существенно зависит от атомного номера рабочего вещества детектора и от объема чувствительной области. Выбор германия в качестве исходного материала для изготовления детектора, несмотря на большие трудности в изготовлении, связан с тем, что сечение взаимодействия фотонов  $\gamma$ -излучения сильно зависит от атомного номера вещества  $Z$ . Особенно сильно зависит от  $Z$  сечение фотоэффекта ( $\sigma_{\phi} \sim Z^5$ ), сечение же комптон-эффекта пропорционально  $Z$ , а сечение процесса образования электрон-позитронных пар –  $Z^2$  (см. раздел NS.PR2.3 курса «Основы ядерной физики»). Большое значение  $Z$  у германия ( $Z(Ge) = 32$ , а  $Z(Si) = 14$ ) и определяет выбор этого материала, поскольку обеспечивает более высокую эффективность регистрации фотонов  $\gamma$ -излучения по сравнению с кремниевым детектором. Коаксиальная геометрия детектора позволяет значительно повысить эффективность

регистрации фотонов  $\gamma$ -излучения по сравнению с детектором в планарной (плоскостной) геометрии.

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, 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. раздел 4.8.). Низкая фотоэлектрическая эффективность кремния при энергиях свыше 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.

*Таблица 4.2.4. Некоторые эксплуатационные характеристики полупроводниковых детекторов*

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

\*) – NaI включен в таблицу для удобства сравнения.

Помимо германия и кремния в гамма-спектрометрии применялись и другие твердотельные детектирующие среды. Для измерений в неразрушающем анализе, 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 кристаллодетектора. Работа при комнатной температуре таких полупроводниковых материалов, как CdTe, HgI<sub>2</sub> и GaAs была всесторонне исследована. Их более высокие средние атомные номера обеспечивают большую фотоэлектрическую эффективность на единицу объема материала. Некоторые из их эксплуатационных характеристик представлены в табл. 4.2.4. Однако в настоящее время эти материалы для детекторов находят ограниченное применение в задачах неразрушающего анализа, главным образом вследствие невозможности изготовления достаточно больших кристаллов для обеспечения высокой эффективности регистрации. С улучшением технологии выращивания кристаллов эти детекторы могут стать более привлекательными в качестве удобных детекторов высокого разрешения, работающих при комнатной температуре.

#### ***Временные характеристики спектрометра***

Процессы измерения и регистрации импульсов в современных системах детектирования осуществляется автоматизировано с использованием аналого-цифровых преобразователей и модулей памяти, позволяющих хранить различные по характеристикам сигналы в разных ячейках. Для такой обработки информации требуется некоторое время. Во-первых, длительность процесса преобразования амплитуды в код составляет 10–100 мкс и может зависеть от номера канала памяти в котором размещается информация. Во-вторых, компьютер затрачивает какое-то время на приём и обработку сигналов от аналого-цифрового преобразователя (АЦП), причем это время переменное и четко не определено.

Так как анализируемые импульсы распределены во времени статистически, то при любом быстродействии устройств возможен приход очередного импульса в тот момент, когда происходит анализ предыдущего. В этом случае может произойти искажение результата. Чтобы избежать этого, после поступления импульса вход, АЦП закрывается на время, необходимое для обработки сигнала (до прихода сообщения от компьютера о том, что номер канала прочитан). Это время называется «мёртвым». Оно может иметь значение от микросекунд до десятков миллисекунд. В течение мёртвого времени приход других импульсов на вход АЦП не приводит к их регистрации. Время, в течение которого АЦП в полной готовности ждет прихода очередного импульса, называется «живым» временем. Из-за «мертвого» времени возникает потеря информации – просчеты. Однако в данном случае «мёртвое» время приводит лишь к

уменьшению числа зарегистрированных в каждом канале импульсов и не отражается на форме полученного распределения. В самом деле, заблокированное состояние АЦП и появление в течение времени блокировки очередного импульса – события независимые. Поэтому, число потерянных в каком-то канале импульсов пропорционально общему числу импульсов в этом канале. Это справедливо для всех каналов. Таким образом, наличие «мёртвого» времени не искажает амплитудного распределения. Оно должно учитываться при абсолютных измерениях интенсивностей и при сравнении разных спектров. На практике потеря информации от просчетов учитывается путем измерения «живого» времени в процессе накопления данных.

Средняя частота поступления статистически распределенных во времени импульсов на вход спектрометрического тракта называется **загрузкой**. При больших нагрузках интервалы между импульсами могут оказаться сравнимыми с длительностью импульсов. Возникнут наложения сигналов в спектрометрическом тракте, что приведет к искажению амплитудного распределения, в частности, к ухудшению разрешения. Для предотвращения этого эффекта при конструировании усилителей и преобразователей принимаются соответствующие меры. Тем не менее, актуальность этой проблемы во многих случаях сохраняется. Время набора данных зависит от многих конкретных условий. Часто одним из таких условий является допустимая статистическая погрешность. Для ускорения набора до заданной «статистики» можно увеличить нагрузку, например, за счет большей активности источника или приближения его к детектору. Однако при этом следует проявлять осторожность в связи с увеличением «мертвого» времени и количества возможных просчетов.

### NS4.3 ДЕТЕКТИРОВАНИЕ НЕЙТРОНОВ

Источниками нейтронного излучения обычно являются ядерные материалы. Поэтому методы детектирования нейтронов активно применяются для их анализа. Существует большое разнообразие детектирующих систем и методик, позволяющих измерять не только количество ядерного материала в целом, но и отдельных изотопов. Краткое описание принципов регистрации, оборудования и методов приводится в данном разделе.

#### NS4.3.1 Взаимодействие нейтронов с веществом, замедление нейтронов

Достаточно подробное описание ядерных реакций и процесса замедления нейтронов приводится в курсах NS.PR2 и NS3. Ядерная энергия, ядерный топливный цикл и прикладные ядерные технологии. В данном разделе курса акцент сделан на рассмотрение основных особенностей взаимодействия нейтронов с веществом, важных для дальнейшего понимания физических основ функционирования систем их детектирования, а также определения характеристик ядерных и радиоактивных материалов.

При прохождении нейтронов через вещество могут иметь место два вида взаимодействия с ядрами поглощающей среды. В первом случае в результате взаимодействия нейтронов с ядрами вещества природа последних не изменяется, а сами нейтроны рассеиваются на атомных ядрах. При этом следует рассматривать упругое и неупругое рассеяние.

При втором виде взаимодействия изменяется природа соударяющихся частиц. Происходят ядерные реакции типа  $(n, \alpha)$ ,  $(n, p)$ ,  $(n, \gamma)$ ,  $(n, 2n)$  и так далее, и наблюдается деление тяжелых ядер.

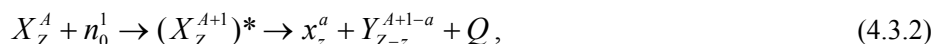
Ядерные реакции под действием нейтронов в общем виде можно представить следующей схемой:



где  $X, Y$  – исходное и конечное ядра;  $n$  – нейтрон, бомбардирующий ядро  $X$ ;  $x$  – излучаемая частица в результате реакции с массой  $a$  и зарядом  $z$ ;  $Z$  – порядковый номер элемента.

В формуле 4.3.1 верхние индексы обозначают массовые числа частиц, нижние – их заряды.

Развернутая формула ядерной реакции под действием нейтрона может быть записана следующим образом:



где  $(X_Z^{A+1})^*$  – ядро, находящееся в промежуточном возбужденном состоянии (составное ядро);  $Q$  – энергия реакции.

Энергия возбуждения составного ядра равна сумме кинетической энергии нейтрона, бомбардирующего данное ядро, и энергии связи, вносимой нейтроном в результате поглощения ядром. Энергия связи представляет собой разность между суммарной массой входящих в ядро нейтронов и протонов и истинной массой ядра.

Энергия связи определяет степень возбуждения промежуточного ядра, от которой зависит конечная ядерная реакция. После взаимодействия нейтрона с ядром через  $10^{-15}$  –  $10^{-17}$  с происходит распад составного ядра. В результате распада из составного ядра может быть испущен нейтрон почти с такой же энергией, что и поглощенный ядром-мишенью, за вычетом энергии, переданной ядру отдачи. Такая ядерная реакция  $(n, n')$  называется упругим рассеянием через составное ядро, или резонансным рассеянием. Составное ядро может быть образовано, если сумма кинетической энергии и энергии связи бомбардирующего нейтрона соответствует одному из возбужденных состояний ядра-мишени. Процесс, при котором составное возбужденное ядро испускает нейтрон с энергией меньшей, чем падающий нейтрон, но при этом продолжает оставаться в возбужденном состоянии и впоследствии испускает гамма-квант, называется неупругим рассеянием нейтронов ( $(n, n\gamma)$ -реакция). Неупругое рассеяние происходит при столкновении быстрых нейтронов с атомными ядрами.

Для возбуждения легких атомных ядер требуется значительная энергия (например, для атомного ядра углерода 4 МэВ). Для более тяжелых ядер – меньшая энергия (порядка 0,1 МэВ). Вследствие этого неупругое рассеяние быстрых нейтронов незначительно на легких ядрах. Для атомных ядер элементов, расположенных в середине и конце таблицы Менделеева, эффективное сечение неупругого рассеяния  $\sigma_{in}$  составляет большую часть полного сечения  $\sigma_t$ .

Быстрые нейтроны (с энергией в несколько МэВ) при прохождении через среду (со средней атомной массой) испытывают при взаимодействии с ней одно-два неупругих столкновения, в результате чего нейтроны теряют значительную часть своей энергии, а затем уже испытывают только упругое рассеяние. В среде с легкими ядрами быстрые нейтроны испытывают только упругое рассеяние.

Существующие источники нейтронов генерируют быстрые нейтроны. При прохождении быстрых нейтронов через вещество, они испытывают, прежде всего, рассеяние (замедление) на ядрах атомов (так как сечение захвата намного меньше, чем сечение рассеяния). При достижении тепловых скоростей (порядка 2200 м/с), замедленные нейтроны могут быть захвачены ядрами атомов.

Ядерные реакции типа  $(n, \gamma)$  называются радиационным захватом. При этой реакции образуется возбужденное составное ядро. Энергия возбуждения при переходе ядра в основное состояние излучается в виде фотонов  $\gamma$ -излучения. При значительной энергии возбуждения составное ядро может испускать заряженные частицы или два нейтрона  $((n, p), (n, \alpha), (n, np)$  и  $(n, 2n)$  – реакции). Составные тяжелые ядра испытывают процесс деления.

Другой тип упругого рассеяния обусловлен малой проникаемостью поверхности ядра для медленных нейтронов. Его называют обычным потенциальным рассеянием. Процесс состоит в том, что падающий нейтрон за счет ядерного потенциала испытывает такое отклонение в поле ядра, как будто бы ядро становится непроницаемой сферой.

Упругое рассеяние быстрых нейтронов на ядрах широко используется для детектирования, так как энергию, переданную ядру отдачи, можно измерить.

Вероятность перечисленных ядерных реакций характеризуется микро- и макроскопическими эффективными сечениями ( $\Sigma_s = N\sigma_s$  – упругое рассеяние нейтронов;  $\Sigma_{in} = N\sigma_{in}$  – неупругое рассеяние нейтронов;  $\Sigma_r = N\sigma_r$  – ядерные расщепления;  $\Sigma_a = N\sigma_a$  – поглощение нейтронов ядрами;  $\Sigma_{n,\gamma} = N\sigma_{n,\gamma}$  – излучение гамма-квантов (радиационный захват);  $\Sigma_f = N\sigma_f$  – деление ядер;  $\Sigma_t = N\sigma_t$  – полное сечение):

$$\Sigma_t = N(\sigma_s + \sigma_{in} + \sigma_r + \sigma_a + \sigma_{n,\gamma} + \sigma_f), \quad (4.3.3)$$

где  $N$  – число ядер в  $1 \text{ см}^3$ .

Изменение полных эффективных сечений некоторых веществ в зависимости от энергии нейтронов  $\sigma_t = f(E)$  представлено на рис. 4.3.1.

Если полное эффективное сечение  $\sigma_t$  определяется только упругим рассеянием  $\sigma_s$ , то с уменьшением энергии нейтронов оно или не изменяется (Nb, O, Mg, Si на рис. 4.3.1), или изменяется незначительно (Cu). Для некоторых элементов (Rh, Cd и др.) возрастание  $\sigma_t$  с уменьшением энергии объясняется влиянием радиационного захвата, который характерен для элементов со средней ( $25 < A < 80$ ) и большей ( $A > 80$ ) атомной массой. Существуют также исключения из приведенных правил, например, марганец. В случае преобладания резонансного рассеяния, на медленно меняющуюся компоненту может накладываться резонансная, с острыми максимумами. При энергиях нейтронов более 0,1 МэВ заметным становится влияние потенциального рассеяния. При энергиях более 2 МэВ у некоторых элементов (Cu, Fe, Co и др.)  $\sigma_t$  возрастает, а затем уменьшается за счет снижения вероятности воздействия нейтронов на встречающиеся ядра.

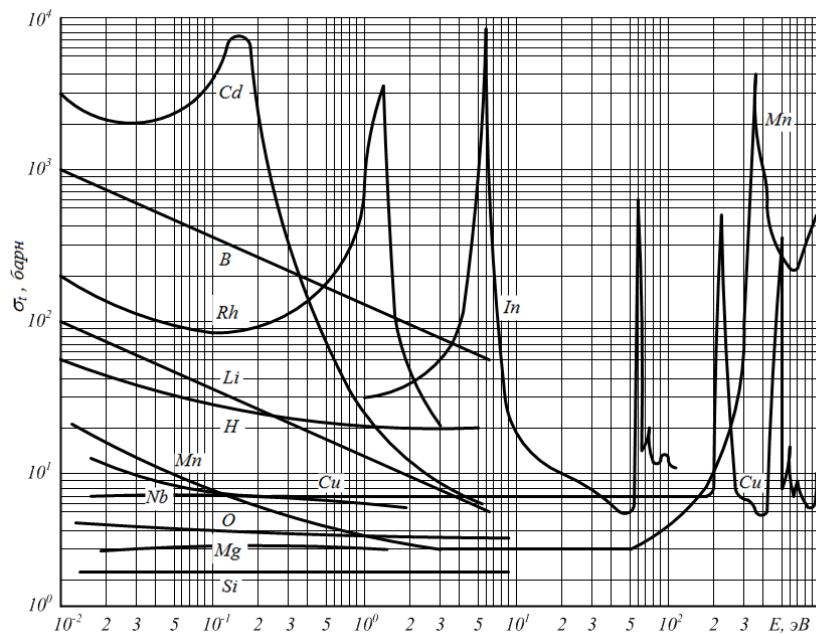


Рис. 4.3.1. Изменение полных эффективных сечений некоторых элементов в зависимости от энергии нейтронов

В зависимости от характера взаимодействия нейтронов с веществом, их условно можно разделить на несколько групп:

- ультрахолодные и холодные нейтроны – с энергией менее  $10^{-7}$  эВ и менее  $5 \cdot 10^{-3}$  эВ, соответственно. Ультрахолодные и холодные нейтроны отличаются аномально большой проникающей способностью при прохождении через поликристаллические вещества;

- тепловые нейтроны, находящиеся в термодинамическом равновесии с рассеивающими атомами окружающей среды, диффундируют через относительно слабо поглощающие среды так, что их скорости стремятся к максвелловскому распределению. Поэтому их называют тепловыми. Их скорости характеризуются энергией  $E_0 = kT$ , соответствующей максимуму максвелловского распределения ( $T$  – абсолютная температура среды, сквозь которую диффундируют нейтроны;  $k$  – постоянная Больцмана). Основным видом взаимодействия тепловых нейтронов с веществом является радиационный захват – реакции ( $n, \gamma$ );

- надтепловые нейтроны – обладают энергией от 0,1 эВ до 0,5 кэВ. Для отделения тепловых нейтронов от надтепловых их пропускают через кадмий, который поглощает нейтроны с энергией менее 0,5 эВ. Нейтроны, прошедшие через кадмий, иногда называют надкадмиевыми. Надтепловые или надкадмиевые нейтроны не находятся в тепловом равновесии со средой, через которую они диффундируют, и, следовательно, не подчиняются максвелловскому распределению. При прохождении надтепловых нейтронов через поглощающие и рассеивающие среды, их сечение взаимодействия подчиняется, в основном, закону  $1/v$ . При определенных значениях энергии нейтронов возникают реакции радиационного захвата – реакции ( $n, \gamma$ );

- нейтроны промежуточных энергий от 0,5 кэВ до 0,2 МэВ. Для нейтронов этих энергий наиболее типичным процессом взаимодействия с веществом является упругое рассеяние;

- быстрые нейтроны с энергией от 0,2 до 20 МэВ. Характеризуются как упругим, так и неупругим рассеянием и возникновением пороговых ядерных реакций;

- сверхбыстрые нейтроны обладают энергией выше 20 МэВ. Они отличаются ядерными реакциями с вылетом большого числа частиц. При энергии нейтронов выше 300 МэВ наблюдается слабое взаимодействие нейтронов с ядром (прозрачность ядер для сверхбыстрых нейтронов) и появление «реакций скалывания», в результате которых бомбардируемое ядро испускает несколько осколков.

На рис. 4.3.2 показана схема, приблизительно отображающая области энергий, в которых сечения различных типов взаимодействия нейтронов с материалами, принимают свои наибольшие значения (черный и серый цвет гистограмм).

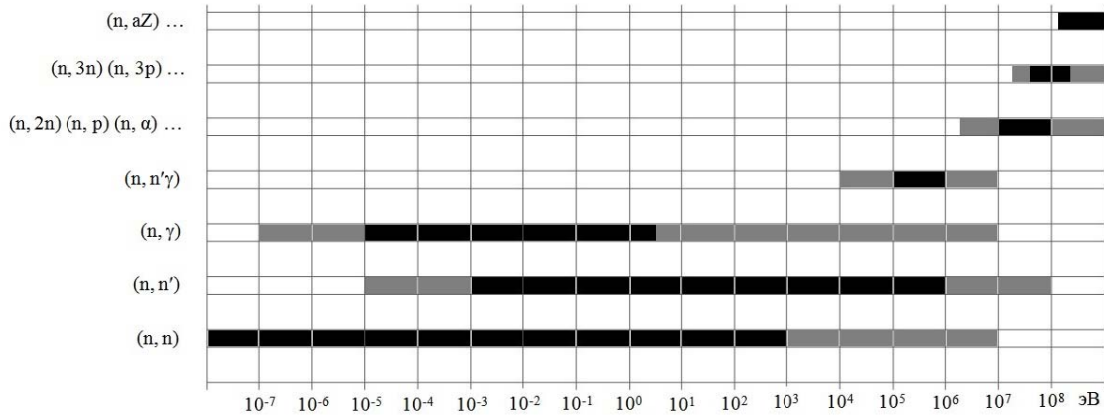


Рис. 4.3.2. Схема взаимодействий нейтронов с ядрами

Все искусственные источники нейтронов (см. раздел 4.3.5) генерирует их в спектре, состоящем в основном из быстрой компоненты. В процессе замедления нейтронов основную роль играют упругие столкновения. В случае упругого рассеяния нейтронов на ядрах отдачи, изменяется как направление движения нейтрона, так и его кинетическая энергия (рис. 4.3.3).

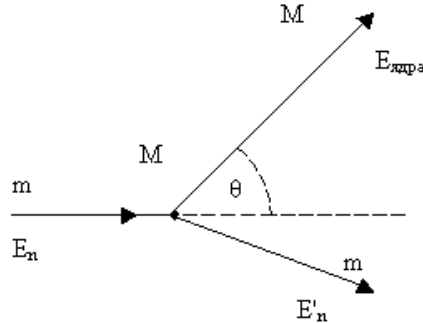


Рис. 4.3.3. Схема упругого столкновения нейтрона с ядром

Для расчета энергии, теряемой нейтроном в процессе упругого рассеяния, применим закон сохранения энергии и импульса. Для описания процесса столкновения вводятся следующие обозначения:  $M_{\text{я}}$  и  $M_{\text{н}}$  – массы ядра и нейтрона соответственно;  $v_0$  и  $v_{\text{н}}$  – скорость нейтрона до и после столкновения с ядром;  $v_{\text{я}}$  – скорость ядра отдачи после столкновения. При нелобовом соударении углы рассеяния, то есть углы между направлениями движения ядра отдачи и рассеянного нейтрона и первоначальным направлением движения нейтрона, обозначаются, как  $\Theta_{\text{я}}$  и  $\Theta_{\text{н}}$  соответственно. Согласно сделанным обозначениям, законы сохранения энергии и импульса будут записываться с помощью уравнений:

$$\frac{M_{\text{н}} v_0^2}{2} = \frac{M_{\text{н}} v_{\text{н}}^2}{2} + \frac{M_{\text{я}} v_{\text{я}}^2}{2}, \quad (4.3.4)$$

$$M_{\text{н}} \vec{v}_0 = M_{\text{н}} \vec{v}_{\text{н}} + M_{\text{я}} \vec{v}_{\text{я}} \quad (4.3.5)$$

или

$$v_0^2 = v_{\text{н}}^2 + \alpha v_{\text{я}}^2, \quad (4.3.6)$$

$$\vec{v}_0 = \vec{v}_{\text{н}} + \alpha \vec{v}_{\text{я}}, \quad (4.3.7)$$



где  $\alpha = M_{\text{я}} / M_{\text{н}}$ .

То же выражение в проекциях на оси  $x$  и  $y$ :

$$v_0 = v_{\text{н}} \cos \Theta_{\text{н}} + \alpha v_{\text{я}} \cos \Theta_{\text{я}} \quad (4.3.8)$$

$$0 = v_{\text{н}} \sin \Theta_{\text{н}} + \alpha v_{\text{я}} \sin \Theta_{\text{я}}. \quad (4.3.9)$$

После возведения в квадрат и сложения выражений 4.3.8 и 4.3.9, а также учитывая соотношение 4.3.4, получается следующее равенство:

$$\frac{v_{\text{я}}}{v_0} = \frac{2 \cos \Theta_{\text{я}}}{\alpha + 1}. \quad (4.3.10)$$

Выражение 4.3.10 позволяет определить изменение энергии нейтрона:

$$\Delta E = E_{\text{я}} = E_0 - E_{\text{н}}.$$

После соответствующих преобразований:

$$\Delta E = \frac{4M_{\text{я}}M_{\text{н}} \cos^2 \Theta_{\text{я}}}{(M_{\text{я}} + M_{\text{н}})^2} E_0. \quad (4.3.11)$$

При  $\Theta_{\text{я}} = 0$  (лобовое соударение) ядро получает максимальную энергию. Тогда

$$\Delta E = \frac{4M_{\text{я}}M_{\text{н}}}{(M_{\text{я}} + M_{\text{н}})^2} E_0 \quad (4.3.12)$$

или

$$\frac{E_{\text{н}}}{E_0} = \left( \frac{M_{\text{я}} - M_{\text{н}}}{M_{\text{я}} + M_{\text{н}}} \right)^2. \quad (4.3.13)$$

Кроме упругого, важную роль в замедлении быстрых нейтронов до нейтронов промежуточных энергий играет неупругое рассеяние на тяжелых ядрах. Таким образом, замедление быстрых нейтронов в среде осуществляется за счет как неупругого, так и в основном упругого рассеяния.

Наилучшими замедлителями являются такие, которые уменьшают скорость быстрых нейтронов до скорости тепловых в результате наименьшего числа столкновений. При рассмотрении замедляющих свойств различных материалов, вводится величина  $\xi$ , называемая среднелогарифмической потерей энергии (логарифмическим декрементом энергии):

$$\xi = \ln \frac{E_0}{E_{\text{н}}} = 1 + \frac{(A-1)^2}{2A} \ln \frac{A-1}{A+1}. \quad (4.3.14)$$

Из выражения 4.3.14 следует, что  $\xi$  зависит только от массового числа замедлителя и не зависит от энергии нейтронов. При каждом столкновении с ядром среды, нейтрон теряет в среднем одну и ту же долю энергии, которой он обладал до соударения, пока его энергия не станет тепловой. Для каждого замедлителя  $\xi$  – величина постоянная. Зная  $\xi$ , можно подсчитать среднее число соударений  $\bar{n}$ , необходимых для замедления быстрого нейтрона до тепловой энергии. Например, для замедления в углероде нейтрона от 2 МэВ до 0,025 эВ требуется следующее количество соударений:

$$\bar{n} = \frac{1}{\xi} (\ln(2 \cdot 10^6) - \ln(25 \cdot 10^{-3})) = \frac{18,2}{\xi} = \frac{18,2}{0,158} = 115.$$

По формуле 4.3.14 значение  $\xi$  для углерода составит:

$$\xi = 1 + \frac{(12-1)^2}{2 \cdot 12} \ln \frac{12-1}{12+1} = 0,158.$$

В табл. 4.3.1 приведены значения  $A$ ,  $\xi$  и  $\bar{n}$  для некоторых веществ при замедлении нейтронов от 2 МэВ до 0,025 эВ.

Таблица 4.3.1. Замедляющие свойства некоторых веществ

Вещество	$A$	$\xi$	$\bar{n}$
Водород	1	1,0	15
Дейтерий	2	0,726	25
Бериллий	9	0,208	85
Углерод	12	0,158	115
Уран*	238	0,00838	2172

\*) – приводится для сравнения замедления на легких и тяжелых ядрах.

Согласно данным, приведенным в таблице, наилучшими замедлителями являются вещества, содержащие водород (например, вода) или другие легкие элементы.

### NS4.3.2 Нейтронные детекторы

Нейтрон является незаряженной частицей и поэтому не создает при своем движении ионизацию окружающей среды. Ионизация среды является вторичным процессом и возникает как результат различных реакций взаимодействия нейтронов с атомами и ядрами элементов среды. Поэтому механизмы регистрации нейтронов в веществе основаны на косвенных методах. 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 последнему части кинетической энергии нейтрона. Если при этом передается достаточное количество энергии, ядро отдачи ионизирует вещество в месте 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, фотоны гамма-излучения и осколки деления, могут регистрироваться детектором. Условием 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.

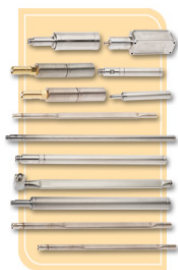
Детекторы, использующие либо механизм отдачи, либо механизм ядерной реакции, могут иметь твердое, жидкое или газообразное наполнение. Хотя выбор реакций ограничен, детектирующая среда может быть достаточно разнообразна, что создает множество вариантов. В настоящем разделе курса наиболее полно описываются детекторы, имеющие наибольшее распространение в практике контроля и анализа ядерных материалов. Возможности спектрального анализа полей нейтронов ограничены. 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 в такой ситуации, это информация о том, инициировано ли это взаимодействие нейтроном высокой или низкой энергии. В счетчиках на ядерных реакциях используется преимущество более высокой вероятности реакции при низких энергиях нейтронов путем предварительного их замедления. Информация о начальной энергии нейтронов до замедления при этом теряется. Энергия, регистрируемая детектором в этом случае – это энергия реакции (и, возможно, остаточная кинетическая энергия нейтронов). Таким образом, в большинстве случаев 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.

Принципы работы детекторов более подробно рассмотрены в разделе 4.2 данного курса. Дополнительная информация о методических особенностях детектирования нейтронов приведена в разделе 4.3.4.

### *Газонаполненные детекторы*

Газонаполненные детекторы были одними из первых приборов, использовавшихся для регистрации излучений, и по-прежнему широко используются в практике регистрации нейтронов. 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.

По своему конструктивному исполнению современные газонаполненные нейтронные детекторы представляют собой металлические цилиндры с электрическим разъемом на одном конце (или на обоих концах при проведении позиционно чувствительных измерений). Стенки корпуса детекторов имеют толщину порядка 0,5 мм и изготавливаются из нержавеющей стали или алюминия (см. рис. 4.3.4).



*Рис. 4.3.4. Гелиевые детекторы различной конфигурации*



*Рис. 4.3.5. Счетчик с газонаполненными детекторами и замедлителем нейтронов*

Характеристики обоих материалов вполне удовлетворительны, наблюдается лишь незначительное различие в пропускании нейтронов и конструкционной 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 в некоторых экспериментах наблюдался фон 1 имп./мин, который был приписан примеси радия в алюминии.

Центральная нить детекторов обычно имеет толщину порядка 0,03 мм и изготавливается 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 ( $\text{BF}_3$ ) 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  $\text{BF}_3$ , 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.

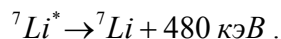
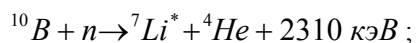
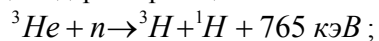
Работа газонаполненных нейтронных счетчиков может осуществляться в любом режиме (см. рис. 4.2.7): ионизационной камеры; пропорционального счетчика; счетчика Гейгера-Мюллера. Нейтронные счетчики, работающие в режиме ионизационной камеры или пропорционального счетчика, могут создавать на выходе или усредненный ток, или отдельные импульсы, что зависит от используемой электронной схемы регистрации. Измерение только усредненного выходного тока, реализуется в радиационных дозиметрах и мониторах мощности реактора (токовых камерах внутризонного контроля). При анализе ядерного материала нейтронные счетчики обычно используются в импульсном режиме, что позволяет регистрировать отдельные нейтроны.

Счетчики Гейгера имеют простую электронику и широко используются в сложных полевых и производственных 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.

В зависимости от области применения, детекторы обычно заполняются различными газами –  $^3\text{He}$ ,  $^4\text{He}$ ,  $\text{BF}_3$  или  $\text{CH}_4$  под давлением от 1 до 20 атм. Для улучшения рабочих характеристик во внутренний объем детектора могут добавляться другие газы. Например, для сокращения длины пробега продуктов реакции, может использоваться один из тяжелых газов, такой как аргон, при этом большая часть кинетической энергии продуктов реакции передается его атомам. 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. В наполнитель пропорционального счетчика может также добавляться многоатомный газ, имеющий эффект газа-гасителя. Такие газы, как  $\text{BF}_3$  и  $\text{CH}_4$ , сами являются многоатомными и не требуют добавления газа-гасителя. Трубки, наполненные  $^3\text{He}$  и  $^4\text{He}$ , часто содержат в качестве добавки незначительное количество  $\text{CH}_4$  или  $\text{CO}_2$ . Поскольку  $\text{BF}_3$  и  $\text{CH}_4$  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.

#### *Детекторы тепловых нейтронов на основе $^3\text{He}$ и $\text{BF}_3$*

В качестве газов-наполнителей детекторов тепловых нейтронов могут использоваться  $\text{BF}_3$  или  $^3\text{He}$ . При использовании  $\text{BF}_3$  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. 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 равна 765 кэВ и 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 детектором воспринимается только 2310 кэВ энергии реакции. Вероятность реакции, при которой ядро лития находится в основном состоянии, составляет 6 %. В этом случае в детекторе воспринимается энергия, равная 2790 кэВ. При указанном режиме реакции образуется небольшой дополнительный пик в спектре амплитуд импульсов счетчиков, наполненных  $\text{BF}_3$ .

Сечение реакции на тепловых нейтронах для  $^3\text{He}$  равно 5330 барн, а для  $^{10}\text{B}$  – 3840 барн. Сечения обеих реакций существенным образом зависят от энергии падающих нейтронов  $E$ . Эта зависимость может быть выражена как  $1/E$ . Зависимость сечения этих реакций от энергии нейтронов показана на рис. 4.3.6. Например, счетчик диаметром 2,54 см, наполненный  $^3\text{He}$  под давлением 4 атм., имеет эффективность регистрации тепловых нейтронов ( $E=0,025$  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  $\text{BF}_3$ ,

обычно окружают полиэтиленом толщиной около 10 см или другими материалами-замедлителями нейтронов (см. подробнее в разделе 4.3.4).

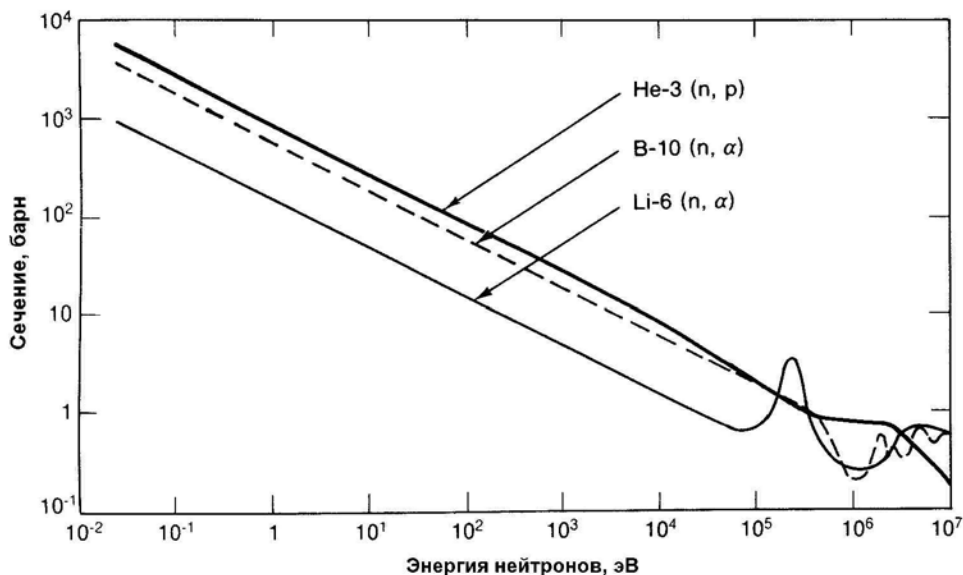


Рис. 4.3.6. Зависимость сечения реакций  ${}^3\text{He}(n, p)$ ,  ${}^{10}\text{B}(n, \alpha)$  и  ${}^6\text{Li}(n, \alpha)$  от энергии нейтронов

На рис. 4.3.6 показан типичный спектр амплитуд импульсов пропорционального счетчика, заполненного  ${}^3\text{He}$ . Форма этого спектра определяется, прежде всего, кинематикой реакции и выбором постоянной времени формирования усилителя. Пик полного поглощения энергии излучения в детекторе, наблюдаемый на спектре, отражает возможность сбора на электродах 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 сбора зарядов в детекторе. При постоянных времени 2 мкс и более, происходит почти полное собирание зарядов и формирование спектров амплитуд импульсов детектора, подобных представленному на рис. 4.3.7. 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. Постоянная времени 0,5 мкс является общепринятым компромиссом между получением хорошего разрешения и высокой скорости счета.

Детекторы, наполненные  ${}^3\text{He}$ , обычно работают от источника питания с напряжением в диапазоне от 1200 до 1800 В. При более высоком напряжении, повышение эффективности регистрации в результате улучшения собирания первичных зарядов очень невелико, около 1 % на 100 В. С другой стороны, суммарная величина собранных зарядов, вследствие газового усиления, с ростом напряжения быстро возрастает, примерно на 100 % на 100 В. В случае, когда  ${}^3\text{He}$ -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  $\text{BF}_3$ , показан на рис. 4.3.8. 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, что выше, чем для гелиевых счетчиков. Плато счетных характеристик схоже с плато для гелиевых счетчиков. Газ  $\text{BF}_3$  дешевле  $^3\text{He}$ , поэтому и производство счетчиков, наполненных  $\text{BF}_3$ , дешевле. Однако большее сечение поглощения  $^3\text{He}$  и возможность достижения более высокого давления газа-наполнителя снижает стоимость счетчиков, наполненных  $^3\text{He}$ , в пересчете на количество зарегистрированных нейтронов. Другим преимуществом гелиевых счетчиков является то, что гелий – инертный газ, в то время как  $\text{BF}_3$  токсичен. Таким образом, для  $\text{BF}_3$  могут существовать дополнительные ограничения в их использовании.

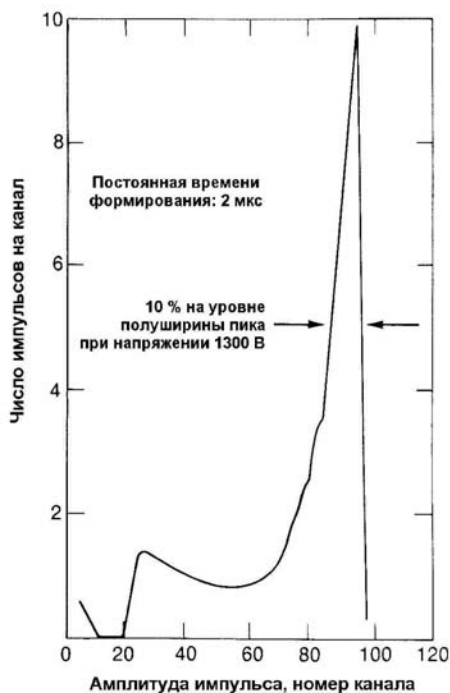


Рис. 4.3.7. Спектр амплитуд импульсов счетчика, наполненного  $^3\text{He}$ , при регистрации тепловых нейтронов

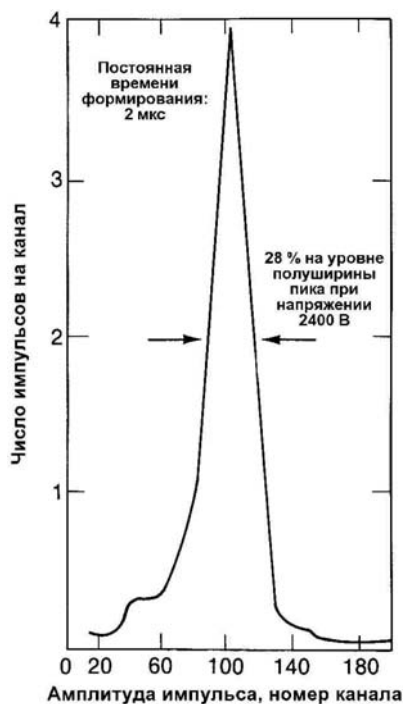


Рис. 4.3.8. Спектр амплитуд импульсов счетчика, наполненного  $10\text{BF}_3$ , при регистрации тепловых нейтронов

Детекторы, наполненные  $^3\text{He}$  и  $\text{BF}_3$ , широко применяются при проведении активного и пассивного нейтронных анализов, что обусловлено относительно высокой стабильностью их работы, эффективностью и нечувствительностью к гамма-излучению. 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 гамма-квантами. Однако, если мощность дозы гамма-излучения больше, чем при использовании обычных плутониевых или урановых образцов, возможно негативное их влияние на функцию отклика  $^3\text{He}$  и  $\text{BF}_3$  детекторов. Предельная мощность дозы гамма-излучения составляет на практике величину порядка 1 Р/ч. Некоторое улучшение спектра амплитуд импульсов может быть достигнуто заменой аргона в объеме счетчиков на  $\text{CO}_2$  с концентрацией около 5 %. 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  $\text{BF}_3$ , к гамма-излучению сравнима или несколько лучше, чем у гелиевых детекторов. Энергия, передаваемая газу в результате

взаимодействия нейтрона с ядром  $^{10}\text{B}$ , больше энергии от взаимодействия нейтрона с ядром  $^3\text{He}$ , но и энергия, передаваемая газу в результате взаимодействия гамма-квантов, также выше. Сечение реакции взаимодействия нейтрона с ядром  $^3\text{He}$  выше, чем с ядром  $^{10}\text{B}$ . Сечение взаимодействия гамма-квантов зависит от относительного содержания  $^3\text{He}$ , аргона и  $\text{BF}_3$ , а также от толщины стенок корпуса счетчика. Детекторы, наполненные  $\text{BF}_3$ , сохраняют работоспособность в гамма-полях с мощностью дозы до 10 Р/ч, что лучше показателей счетчиков, наполненных смесью  $^3\text{He}$  с аргоном. Однако рабочие характеристики счетчиков, наполненных смесью  $^3\text{He}$  с  $\text{CO}_2$ , сопоставимы с характеристиками счетчиков, наполненных  $\text{BF}_3$ .

#### *Детекторы быстрых нейтронов, наполненные $^4\text{He}$ и $\text{CH}_4$*

Работа детекторов быстрых нейтронов, наполненных  $^4\text{He}$  и  $\text{CH}_4$ , 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. При единичном рассеянии действительная энергия, передаваемая ядру отдачи, в зависимости от угла рассеяния изменяется в диапазоне от 0 до  $E$ , при этом все значения энергии в данном диапазоне равновероятны. Согласно уравнению 4.3.12, для получения от нейтрона значительной энергии ядро-мишень должно иметь небольшую массу. Наиболее целесообразно использовать водород, как в газообразном состоянии, так и в составе материалов жидких и пластмассовых сцинтилляторов. Широко используются детекторы, наполненные метаном ( $\text{CH}_4$ ), имеющим высокое содержание водорода, или  $^4\text{He}$ , для которого максимальная передаваемая энергия равна  $0,64E$  нейтрона. Газ  $^3\text{He}$  также соответствует указанным критериям, но он обычно не используется из-за характера реакций, описанных ранее. На рис. 4.3.9 проиллюстрирована зависимость сечения упругого рассеяния для  $^1\text{H}$  и  $^4\text{He}$  от энергии нейтронов. На графике показано, что кривые этой зависимости соответствуют форме энергетического спектра нейтронов деления. Следует отметить, что приведенные значения сечений упругого рассеяния значительно меньше сечений для  $^3\text{He}$  и  $^{10}\text{B}$ , приведенных на рис. 4.3.5. Кроме того, эффективность регистрации быстрых нейтронов по реакции упругого рассеяния приблизительно на два порядка ниже, чем эффективность захвата тепловых нейтронов. Таким образом, единственный детектор, наполненный  $^4\text{He}$  или  $\text{CH}_4$ , имеет собственную эффективность около 1 %.

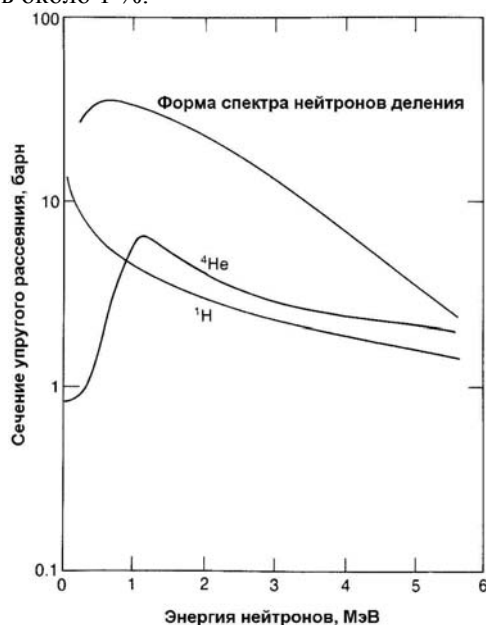


Рис. 4.3.9. Зависимость сечения упругого рассеяния на  $^1\text{H}$  и  $^4\text{He}$  от энергии нейтронов (с наложением на рисунок кривой спектра нейтронов деления)



$^4\text{He}$  или  $\text{CH}_4$  газонаполненные счетчики работают в пропорциональном режиме 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  $\text{CH}_4$  или  $\text{H}_2$  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.

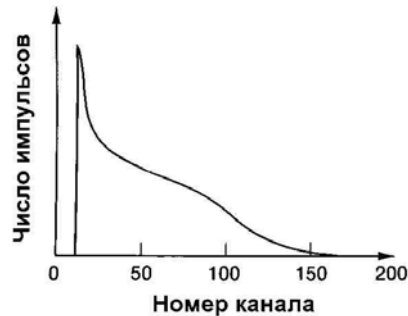


Рис. 4.3.10. Спектр амплитуд импульсов пропорционального счетчика, наполненного  $^4\text{He}$ , при регистрации нейтронов изотопного источника нейтронов  $^{252}\text{Cf}$

На рис. 4.3.10 представлен спектр амплитуд импульсов пропорционального счетчика, наполненного  $^4\text{He}$ , полученный при регистрации нейтронов источника  $^{252}\text{Cf}$ . Наблюдаемая форма спектра определяется следующими факторами:

- энергетическим спектром нейтронов спонтанного деления  $^{252}\text{Cf}$ ;
- вероятностью передачи ядру отдачи энергии в диапазоне от 0 до  $E$ ;
- вероятностью многократных рассеяний нейтронов, а также вероятностью потери энергии ядер отдачи в стенках корпуса счетчика;
- 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. 4.3.9. Несмотря на это, часть информации сохраняется, а другая 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 со 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.

#### **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  $^{235}\text{U}$ . На внутренние стенки методом электролиза (иногда испарением или кистью) наносится очень тонкий слой урана (поверхностная плотность от 0,02 до 2 мг/см<sup>2</sup>), 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. 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/см<sup>2</sup>. 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. 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. 4.3.11 показан спектр амплитуд импульсов от камеры деления с покрытием из  $^{235}\text{U}$ . 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 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.

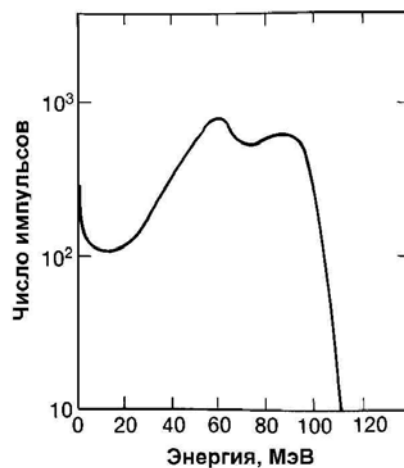


Рис. 4.3.11. Спектр амплитуд импульсов камеры деления с покрытием из  $^{235}\text{U}$  с поверхностной плотностью около 0,8 мг/см<sup>2</sup>

Ввиду значительной энергии осколков деления, из всех нейтронных детекторов камеры деления наименее чувствительны к гамма-излучению (примерно до 10<sup>6</sup> 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 интенсивных нейтронных и гамма-полях. Присущая камерам деления низкая эффективность компенсируется возможностью регистрации значительного числа нейтронов.

#### *Детекторы с покрытием из $^{10}\text{B}$*

Детекторы с покрытием из  $^{10}\text{B}$  занимают промежуточное положение между пропорциональными счетчиками, наполненными  $^3\text{He}$  и  $^{10}\text{BF}_3$ , и камерами деления, с точки зрения эффективности регистрации нейтронов и чувствительности к гамма-излучению. Конструктивно детекторы с покрытием из  $^{10}\text{B}$  похожи на камеры деления, использующие в качестве радиатора чувствительный к нейтронам бор, который очень тонким слоем (около  $0,2 \text{ мг/см}^2$ ), наносится на стенки детектора.

Регистрация нейтронов детекторами с покрытием из  $^{10}\text{B}$  основана на реакции, выраженной уравнением  $^{10}\text{B} + n \rightarrow ^7\text{Li}^* + ^4\text{He} + 2310 \text{ кэВ}$ . В газ попадает либо альфа-частица, либо ядро лития, но не обе частицы, поскольку они излучаются в противоположные стороны. Так как пробег альфа-частиц в боре составляет около  $1 \text{ мг/см}^2$ , покрытие должно быть тонким. Эффективность регистрации (порядка 10%) при этом ниже, чем у счетчиков, наполненных  $\text{BF}_3$ . 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  $0,25 \text{ атм.}$  с небольшой добавкой  $\text{CO}_2$ . Счетчик работает в пропорциональном режиме при рабочем напряжении от 600 до 850 В.

На рис. 4.3.12 показан спектр амплитуд импульсов камеры с покрытием из  $^{10}\text{B}$ , 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.

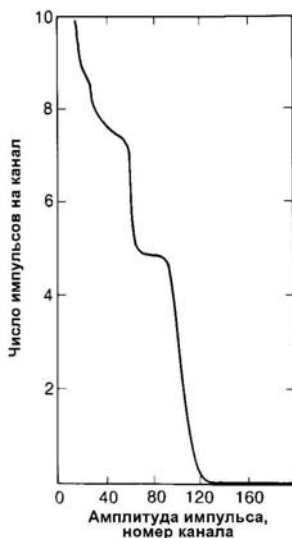


Рис. 4.3.12. Спектр амплитуд импульсов пропорционального счетчика с покрытием из  $^{10}\text{B}$

Счетчики с покрытием из  $^{10}\text{B}$  имеют среднюю эффективность регистрации тепловых нейтронов и низкую эффективность регистрации быстрых нейтронов. Их удобно использовать для регистрации нейтронов в интенсивных полях гамма-излучения. При наличии соответствующей электроники, эти детекторы могут работать в гамма-полях с мощностью дозы до  $1000 \text{ Р/ч}$  с 50 % потерей эффективности регистрации нейтронов, которая является

следствием установления более высокого порога дискриминации для исключения импульсов от гамма-квантов. Меньшая чувствительность счетчиков с покрытием из  $^{10}\text{B}$  по сравнению со счетчиками, наполненными  $\text{BF}_3$ , 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.

#### ***Пластмассовые и жидкие сцинтилляторы***

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. 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-излучению. 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.

Быстрые нейтроны взаимодействуют с материалом сцинтиллятора в реакциях упругого рассеяния на ядрах (в основном углерода и водорода). Нейтроны спектра деления или ( $\alpha, n$ )-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  $^{12}\text{C}$ , ему может быть передано не более 28 %. Кинетическая энергия протонов отдачи поглощается сцинтиллятором и, в конечном итоге, преобразуется в тепло и свет, который регистрируется ФЭУ. Максимум в спектре светового излучения соответствует длине волны  $\sim 400$  нм. Для такого излучения толщина слоя светового поглощения в некоторых современных сцинтилляторах 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 редким явлением.

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/см<sup>3</sup>, в то время как плотность органических сцинтилляторов – около 1 г/см<sup>3</sup>. 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. 4.3.13 изображена зависимость вероятности взаимодействия, выраженной в виде линейного коэффициента ослабления с материалом сцинтиллятора NE213 от энергии. Согласно приведенным на рисунке данным, вероятность взаимодействия нейтронов с энергией 1 МэВ с материалом жидкого сцинтиллятора толщиной 5 см равна примерно 78 %, а вероятность взаимодействия гамма-квантов с энергией 1 МэВ – примерно 26 %. Пробеги протонов и электронов отдачи в сцинтиляторе 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.

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 сцинтилятору, 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. Согласно данным, приведенным на рис. 4.3.14, световыход для протонов всегда меньше, чем для электронов той же энергии. Зависимость световыхода для этих двух частиц от энергии также различна. Обычно световыходы для электронов с энергией 60 кэВ и протонов с энергией 500 кэВ в органических сцинтилляторах примерно одинаковы.

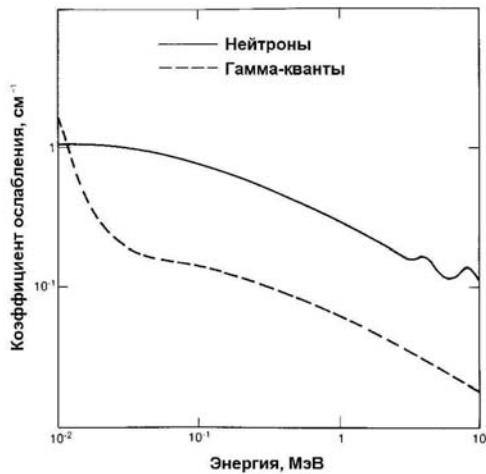


Рис. 4.3.13. Зависимость коэффициента ослабления от энергии нейтронов и гамма-квантов для сцинтиллятора NE213

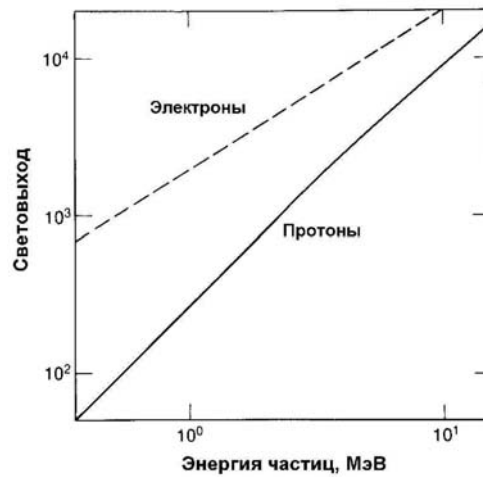


Рис. 4.3.14. Зависимость световыхода от энергии электронов и протонов для сцинтиллятора NE102

Механизм преобразования части кинетической энергии частиц отдачи в видимый свет чрезвычайно сложен, однако ряд его особенностей хорошо известен. Например, наличие быстрой и медленной компонент высвечивания (см. раздел 4.2.4). 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 флуоресценции.

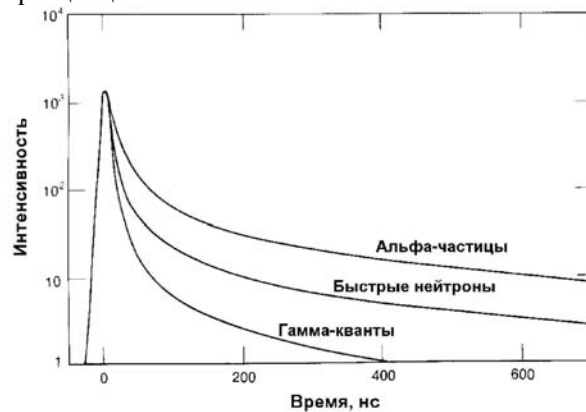


Рис. 4.3.15. Зависимость интенсивности световых импульсов для стилибена от времени высвечивания для различных видов излучения

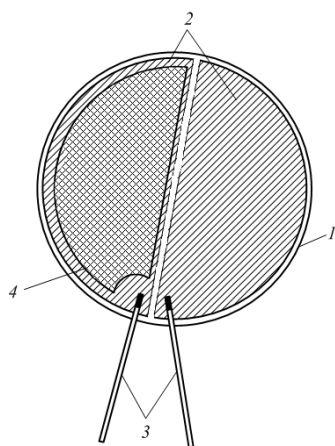
На рис. 4.3.15 показана зависимость световых импульсов в стилибене, являющимся твердым органическим кристаллическим сцинтиллятором, от времени, в течение которого кристалл находится под воздействием различных видов излучений. Наличие такой временной зависимости позволяет идентифицировать импульсы от 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.

#### *Другие типы детекторов нейтронов*

В данном разделе рассматриваются некоторые нейтронные детекторы, которые не получили широкого применения в области анализа ядерных материалов, но тем не менее находят активное применение в других сферах деятельности, где необходим контроль над нейтронным излучением и его характеристиками (энергетике, дозиметрии и так далее).

Среди полупроводниковых детекторов поверхностно-барьерные кремниевые счетчики применяются для регистрации быстрых и медленных нейтронов. Такой счетчик (рис. 4.3.16) состоит из кремниевого диска с нанесенным на его поверхность двумя полукруговыми дисками золота. К поверхности золота прикреплены контакты. Таким образом, две половинки представляют собой два счетчика, которые должны давать одинаковые показания. Одна из половинок используется для измерения фона. На другую наносится слой полиэтилена, служащей источником протонов отдачи при облучении счетчика быстрыми нейтронами. Эта часть датчика и является основной для регистрации нейтронов. Другие типы полупроводниковых детекторов для регистрации нейтронов не используются. Более того, воздействие нейтронов может привести к деградации и выходу из строя облученного детектора, как это показано в разделе 4.2.5.



1. кремниевый диск;
2. нанесенный на диск слой золота;
3. электрические контакты;
4. слой полиэтилена.

*Рис. 4.3.16. Конструктивная схема поверхностно-барьерного кремниевого счетчика нейтронов*

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,  $^{10}\text{B}$  и  $^6\text{Li}$ . 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 одновременно детектором гамма-квантов, то его чувствительность к этому виду излучения обычно высока. Однако существуют конструкции приборов, позволяющие добиться высокой эффективности регистрации нейтронов при низкой чувствительности к гамма-квантам.

Ранее было показано, что органические сцинтилляторы, содержащие большое количество атомов водорода (например, стильбен), обладают высокой эффективностью и активно используются для регистрации быстрых нейтронов. Помимо таких сцинтилляторов 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 церием. Тепловые нейтроны вступают в  $(n, \alpha)$ -реакцию с

ядром  ${}^6\text{Li}$ , и тяжелые альфа-частицы вызывают сцинтилляцию. Детекторы данного типа могут быть изготовлены в виде пластин толщиной около 1 мм. Эффективность регистрации тепловых нейтронов в гамма-полях для них 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. 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. Их эффективность невысока (порядка 1 %), поскольку плохое пропускание света материалом этих детекторов позволяет использовать лишь детекторы небольших размеров. 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 результатам изменений в изотопном составе или в структуре. В качестве примера такой системы 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  $\text{LiF}$ , чувствительность которого к нейтронам может быть повышена обогащением по  ${}^6\text{Li}$ .

Фотографические эмульсии можно использовать в качестве дозиметров тепловых и быстрых нейтронов. Для регистрации тепловых нейтронов используют реакцию на ядрах азота  ${}^{14}\text{N}(n, p){}^{14}\text{C}$ , содержащихся в фотоэмульсии. По образовавшимся на эмульсии трекам от протонов можно подсчитать поток тепловых нейтронов. Если наряду с тепловыми нейтронами в потоке находятся быстрые нейтроны, то следы, образовавшиеся от протонов, трудно отличить от следов протонов отдачи, созданных быстрыми нейтронами. В этом случае указанный способ малоприменим для регистрации тепловых нейтронов. Для увеличения чувствительности фотоэмульсии к тепловым нейтронам, в ее состав добавляют вещества ( ${}^6\text{Li}$ ,  ${}^{10}\text{B}$ ), имеющие большое эффективное сечение захвата тепловых нейтронов. Получающиеся в результате ядерных реакций  ${}^6\text{Li}(n, \alpha){}^3\text{H}$  и  ${}^{10}\text{B}(n, \alpha){}^7\text{Li}$  частицы образуют на эмульсии следы, по которым подсчитывается число тепловых нейтронов, прошедших эмульсию.

Для регистрации нейтронов в широком диапазоне энергий находят применение трековые детекторы. Тяжелые частицы, проходящие через некоторые диэлектрики (слюда, стекло, поликарбонат и другие), образуют в их среде ионные пары. Образовавшиеся при этом электроны быстро удаляются от траектории частицы, а положительные ионы подвергаются взаимному электростатическому отталкиванию, создавая повреждения в кристаллической структуре диэлектрика вдоль траектории частицы. После этого облученные слюда, неорганические стекла протравливаются 48 %-ной плавиковой кислотой (от 3 с до нескольких часов при  $t=20^\circ\text{C}$ ), а полимерные материалы –  $\text{NaOH}$  (от 10 мин до 2 ч, при  $t=70^\circ\text{C}$ ). Обработанные таким образом следы частиц превращаются в треки в виде полых цилиндрических трубочек. Их можно наблюдать на поверхности диэлектрика с помощью микроскопа. Для получения информации о характеристиках поля нейтронов используют трековые детекторы в сочетании с небольшими образцами делящихся материалом, служащим источником продуктов деления. В зависимости от спектра нейтронов можно использовать различные делящиеся нуклиды ( ${}^{235}\text{U}$ ,  ${}^{238}\text{U}$ ,  ${}^{232}\text{Th}$ ,  ${}^{237}\text{Np}$ ,  ${}^{239}\text{Pu}$ ). Трековые нейтронные дозиметры имеют ряд преимуществ по сравнению с другими методами. К ним относятся:

нечувствительность к бета и гамма-излучениям; отсутствие потери информации с течением времени; широкий диапазон измеряемых доз; более простая обработка информации.

Под действием тепловых нейтронов некоторые элементы, имеющие большое сечение активации  $\sigma_{акт.}$  (реакция захвата нейтронов  $(n, \gamma)$ ), можно использовать для измерения плотности потока нейтронов. Для этих целей используются различные фольги, позволяющие определить плотность потока на заданном участке нейтронного поля. Более подробно метод активации рассмотрен в разделе 4.3.4.

#### **Чувствительность детекторов нейтронов к гамма-излучению**

Детекторы нейтронов, рассмотренные ранее в разделе 4.3.2, в определенной и разной 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 фотоны гамма-излучения могут передавать энергию электронам в процессе комптоновского рассеяния, 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 несколько факторов.

Во-первых, для защиты от гамма-излучения можно воспользоваться экраном. 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.

Во-вторых, конструкция и материалы некоторых детекторов способствуют поглощению нейтронов. В табл. 4.3.2 представлены характеристики детекторов тепловых и быстрых нейтронов. На основании приведенных данных следует сделать вывод, что вероятность поглощения тепловых нейтронов значительно выше вероятности поглощения гамма-квантов в приведенных типах детекторов. При регистрации быстрых нейтронов вероятности взаимодействия с материалом детектора быстрых нейтронов и фотонов гамма-излучения сопоставимы.

*Таблица 4.3.2. Вероятность взаимодействия нейтронов и гамма-квантов с материалами пропорциональных счетчиков и сцинтилляторов*

Тип материала детектора	Вероятность взаимодействия	
	Тепловые нейтроны	Фотоны с энергией 1 МэВ
Материалы детекторов тепловых нейтронов		
<sup>3</sup> He в трубке диаметром 2,5 см под давлением 2 атм.	0,77	0,0001
Ag в трубке диаметром 2,5 см под давлением 4 атм.	0,0	0,0005
BF <sub>3</sub> в трубке диаметром 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	Фотоны с энергией 1 МэВ
Материалы детекторов быстрых нейтронов		
<sup>4</sup> He в трубке диаметром 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

В-третьих, материалам некоторых детекторов нейтроны передают больше энергии, чем фотоны гамма-излучения. Нейтроны могут вызывать ядерную реакцию, в ходе которой высвобождается больше энергии, чем передается электрону при комптоновском рассеянии гамма-излучения (средняя энергия, теряемая фотоном 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. 4.3.3 приведены некоторые данные, иллюстрирующие вышесказанное. В ней также показано, что при регистрации быстрых нейтронов пластмассовыми сцинтилляторами, относительная отдача энергии нейтронами и фотонами гамма-излучения примерно одинакова. Поэтому, как ранее было отмечено, их использование в смешанных полях излучения является проблематичным.

Таблица 4.3.3. Количество энергии, передаваемой нейтронами и гамма-квантами материалам пропорциональных счетчиков и сцинтилляторов

Тип материала детектора	Пробег $\alpha$ - 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
Материалы детекторов тепловых нейтронов					
<sup>3</sup> He в трубке диаметром 2,5 см под давлением 2 атм.	2,1	1,1	~500	4,0	125
<sup>3</sup> He в трубке диаметром 2,5 см под давлением 4 атм. + Ag	0,5	6,7	~750	24,0	30
BF <sub>3</sub> в трубке диаметром 5,0 см под давлением 0,66 атм.	0,7	3,6	~2300	25,7	90
Материалы детекторов быстрых нейтронов					
<sup>4</sup> He в трубке диаметром 5,0 см под давлением 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.

В-четвертых, скорость собирания зарядов для регистрации нейтронов и гамма-квантов может различаться. Она во многом зависит от выбора газа-наполнителя или материала сцинтиллятора. В газонаполненных детекторах большей длине 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 фотонами гамма-излучения, 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.

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. 4.3.4 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 (см. раздел 4.5.1). Реальное значение эффективности может оказаться ниже расчетной, которая приведена в табл. 4.3.4.

Таблица 4.3.4. Эффективность и чувствительность к гамма-квантам некоторых детекторов нейтронов

Тип детектора	Размер	Материал, активно поглощающий нейтроны	Энергия нейтронов	Эффективность регистрации нейтронов*, %	Чувствительность к фотонам гамма-излучения**, Р/ч
Пластмассовый сцинтиллятор	Толщина 5 см	$^1\text{H}$	1 МэВ	78	0,01
Жидкий сцинтиллятор	Толщина 5 см	$^1\text{H}$	1 МэВ	78	0,1
Литиевое стекло	Толщина 1 мм	$^6\text{Li}$	Тепловая	50	1
Детектор Хорняка	Толщина 1 мм	$^1\text{H}$	1 МэВ	1	1
Метан под давлением 7 атм.	Диаметр 5 см	$^1\text{H}$	1 МэВ	1	1
$^4\text{He}$ под давлением 18 атм.	Диаметр 5 см	$^4\text{He}$	1 МэВ	1	1
$^3\text{He}$ , 4 атм., и Ag, 2 атм.	Диаметр 2,5 см	$^3\text{He}$	Тепловая	77	1
$^3\text{He}$ , 4 атм., и 5% $\text{CO}_2$	Диаметр 2,5 см	$^3\text{He}$	Тепловая	77	10
$\text{BF}_3$ под давлением 0,66 атм.	Диаметр 5 см	$^{10}\text{B}$	Тепловая	29	10
$\text{BF}_3$ под давлением 1,18 атм.	Диаметр 5 см	$^{10}\text{B}$	Тепловая	46	10
Камера с покрытием $^{10}\text{B}$	0,2 мг/см <sub>2</sub>	$^{10}\text{B}$	Тепловая	10	$10^3$
Камера деления	2,0 мг/см <sub>2</sub>	$^{235}\text{U}$	Тепловая	0,5	$10^6-10^7$

\*) – вероятность взаимодействия нейтронов, попадающих под прямым углом к поверхности детектора;

\*\*) – приблизительный верхний предел мощности дозы гамма-излучения, при которой еще можно получать полезные сигналы на выходе детектора.

#### **Измерение энергетических спектров нейтронов**

Пассивные приборы нейтронного анализа, описанные в данном разделе, обычно основаны на измерении количества нейтронов без учета их энергии. Это обусловлено, во-первых, тем, что радиоактивные материалы излучают нейтроны в широком диапазоне энергий, отличия которых для различных изотопов могут быть незначительными. Во-вторых, регистрация нейтронов основана на косвенных методах, при которых сохраняется незначительная информация об энергии нейтронов. Для большинства взаимодействий, связанных с регистрацией нейтронов, не находится прямой

зависимости между регистрируемым импульсом и энергией нейтронов. В определенной мере исключение составляют детекторы на ядрах отдачи, такие, как счетчики, наполненные  $^4\text{He}$ , 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).

Важность проведения исследований энергетического спектра нейтронов связана с проведением научных работ в области ядерной и нейтронной физики, с теорией и практикой расчетов и управлением ядерным реактором, разработкой новых приборов и решении других научных задач. Методы спектрометрии нейтронов часто сложны и требуют использования громоздких измерительных систем. Некоторые из наиболее часто используемых методов описаны в разделе 4.3.4.

### ***NS4.3.3 Мгновенные и запаздывающие нейтроны***

Нейтрон является нестабильной частицей, имеющий сравнительно небольшой период полураспада (11,7 мин.), и поэтому его длительное существование в окружающей среде не является возможным. Для образования устойчивого поля нейтронного излучения необходим источник их образования. Появление нейтронов связано с реализацией одного из механизмов ядерных превращений, имеющих для этого достаточную степень вероятности реализации – делением ядра, ядерным синтезом (см. раздел 3.1.1 курса NS3 «Ядерная энергия, ядерный топливный цикл и прикладные ядерные технологии»), ядерным реакциям типа  $(\gamma, n)$ ,  $(\alpha, n)$ ,  $(n, m)$ ,  $(n, 2n)$ ,  $\beta^-$  – распаду некоторых нестабильных ядер и другим. В любом случае, появление нейтрона связано с наличием избытка ядерной энергии или возбуждением ядра в результате одного из механизмов ядерных превращений.

Нейтроны, образующиеся непосредственно в ядерных реакциях, носят название мгновенных. Однако часть нейтронов являются результатом вторичных реакций. Такие нейтроны образуются в результате распада продуктов первичных ядерных реакций и носят название запаздывающих. Время их появления («запаздывание») связано с периодом полураспада новых ядер, образующихся в результате первичной реакции. Классическим примером запаздывающих частиц являются нейтроны, образующиеся при  $\beta^-$ -распаде продуктов деления тяжелых ядер (см. раздел 3.2.1 курса NS3 «Ядерная энергия, ядерный топливный цикл и прикладные ядерные технологии»).

Ядерные материалы, используемые в ядерном топливном цикле, излучают как нейтроны, так и фотоны гамма-излучения. 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 создания измеряемого сигнала. Кроме того, если измеряемый образец обладает большой плотностью и размерами, то измерение гамма-излучения становится проблематичным по причине его интенсивного и значительного по абсолютному значению самопоглощения и рассеяния. В этом случае анализ материалов с использованием нейтронов, имеющих высокую проникающую способность через большинство материалов большой плотности, становится более предпочтительным методом.

В данном разделе обсуждаются механизмы образования и характеристики нейтронов, важные для проведения анализа ядерных и радиоактивных материалов. Образование нейтронов в термоядерных реакциях не рассматривается, так как не имеет прикладного значения с точки зрения проблем измерения ядерных и радиоактивных материалов.

### ***Мгновенные нейтроны вынужденного и спонтанного деления***

Основные механизмы и характеристики вынужденного деления тяжелых ядер обсуждаются в разделах 3.1 и 3.2 курса NS3 «Ядерная энергия, ядерный топливный цикл и

прикладные ядерные технологии». По своим основным параметрам спонтанное деление мало от них отличается. Однако физический механизм его возникновения несколько другой. В случае спонтанного деления отсутствует привнесенная извне энергия, и ядерное превращение должно происходить в результате реализации другого механизма. Этим механизмом является квантово-механический процесс прохождения через потенциальный барьер деления ядра на части. Высота барьера и, соответственно, интенсивность деления сильно зависят от атомного номера  $Z$  и массового числа  $A$ . Выходы нейтронов деления некоторых тяжелых изотопов приведены в табл. 4.3.5. Для тория, урана и плутония интенсивность деления низка по 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  $^{240}\text{Pu}$ , составляющий 1020 нейтр./с-г, является самым важным удельным выходом при пассивном нейтронном анализе этого элемента, поскольку  $^{240}\text{Pu}$  – обычно основной нейтронно-излучающий изотоп плутония. Поток нейтронов от облученного топлива создается во многом за счет распада трансплутониевых элементов и прежде всего  $^{242}\text{Cm}$  и  $^{244}\text{Cm}$ .

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. 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. Данный эффект повышает барьер деления и делает нечетно-четные и нечетно-нечетные изотопы более устойчивыми к спонтанному делению по сравнению с четно-четными изотопами.

Таблица 4.3.5 Характеристики нейтронов вынужденного и спонтанного деления

Изотоп $A$	Число протонов $Z$	Число нейтронов $N$	Полный период полу- распада	Период полура- спада спон- танного деления, лет	Выход нейтронов спонтан- ного деления, нейтр./с-г	Множест- венность спонтанного деления	Множест- венность нейтронов вынуж- денного деления
$^{232}\text{Th}$	90	142	$1,41 \cdot 10^{10}$ г.	$>1 \cdot 10^{21}$	$>1 \cdot 10^{-8}$	2,14	1,9
$^{232}\text{U}$	92	140	71,7 г.	$8 \cdot 10^{13}$	1,3	1,71	3,13
$^{233}\text{U}$	92	141	$1,59 \cdot 10^5$ г.	$1,2 \cdot 10^{17}$	$8,6 \cdot 10^{-4}$	1,76	2,4
$^{234}\text{U}$	92	142	$2,45 \cdot 10^5$ г.	$2,1 \cdot 10^{16}$	$5,02 \cdot 10^{-3}$	1,81	2,4
$^{235}\text{U}$	92	143	$7,04 \cdot 10^8$ г.	$3,5 \cdot 10^{17}$	$2,99 \cdot 10^{-4}$	1,86	2,41
$^{236}\text{U}$	92	144	$2,34 \cdot 10^7$ г.	$1,95 \cdot 10^{16}$	$5,49 \cdot 10^{-3}$	1,91	2,2
$^{238}\text{U}$	92	146	$4,47 \cdot 10^9$ г.	$8,20 \cdot 10^{15}$	$1,36 \cdot 10^{-2}$	2,01	2,3
$^{237}\text{Np}$	93	144	$2,14 \cdot 10^6$ г.	$1,0 \cdot 10^{18}$	$1,14 \cdot 10^{-4}$	2,05	2,7
$^{238}\text{Pu}$	94	144	87,74 г.	$4,77 \cdot 10^{10}$	$2,59 \cdot 10^3$	2,21	2,9
$^{239}\text{Pu}$	94	145	$2,41 \cdot 10^4$ г.	$5,48 \cdot 10^{15}$	$2,18 \cdot 10^{-2}$	2,16	2,88
$^{240}\text{Pu}$	94	146	$6,56 \cdot 10^3$ г.	$1,16 \cdot 10^{11}$	$1,02 \cdot 10^3$	2,16	2,8
$^{241}\text{Pu}$	94	147	14,35 г.	$2,5 \cdot 10^{15}$	$5 \cdot 10^{-2}$	2,25	2,8
$^{242}\text{Pu}$	94	148	$3,76 \cdot 10^5$ г.	$6,84 \cdot 10^{10}$	$1,72 \cdot 10^3$	2,15	2,81
$^{241}\text{Am}$	95	146	433,6 г.	$1,05 \cdot 10^{14}$	1,18	3,22	3,09
$^{242}\text{Cm}$	96	146	163 дня	$6,56 \cdot 10^6$	$2,10 \cdot 10^7$	2,54	3,44
$^{244}\text{Cm}$	96	148	18,1 г.	$1,35 \cdot 10^7$	$1,08 \cdot 10^7$	2,72	3,46
$^{249}\text{Bk}$	97	152	320 дней	$1,90 \cdot 10^9$	$1,0 \cdot 10^5$	3,40	3,7
$^{252}\text{Cf}$	98	154	2,646 г.	85,5	$2,34 \cdot 10^{12}$	3,757	4,06

Среди четно-четных изотопов с высоким выходом нейтронов спонтанного деления выделяются  $^{238}\text{U}$ ,  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$ ,  $^{242}\text{Pu}$ ,  $^{242}\text{Cm}$ ,  $^{244}\text{Cm}$  и  $^{252}\text{Cf}$ . 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 является достаточной 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  $^{233}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$  и  $^{239}\text{Pu}$ . Эти изотопы называются «делящимися». Четно-четные изотопы, такие как  $^{238}\text{U}$  и  $^{240}\text{Pu}$ , 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 (см. разделы 3.1.1, 3.1.2 курса NS3 «Ядерная энергия, ядерный топливный цикл и прикладные ядерные технологии»).

Мгновенные нейтроны спонтанного деления обычно используются для анализа ядерных материалов пассивными методами (см. раздел 4.3.4). Мгновенные нейтроны вынужденного деления – для анализа активными методами. Спектры мгновенных нейтронов спонтанного и вынужденного деления схожи по форме и могут аппроксимироваться одинаковыми функциями, например Максвелловским распределением (см. рис. 4.3.17, 4.3.18).

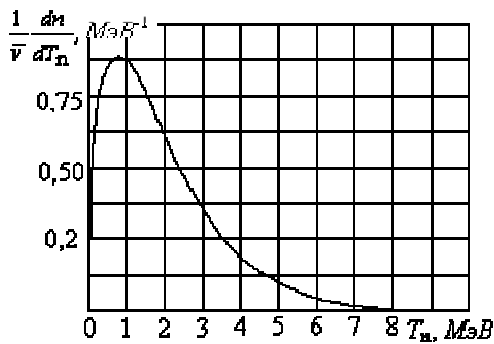


Рис. 4.3.17. Спектр мгновенных нейтронов деления  $^{235}\text{U}$

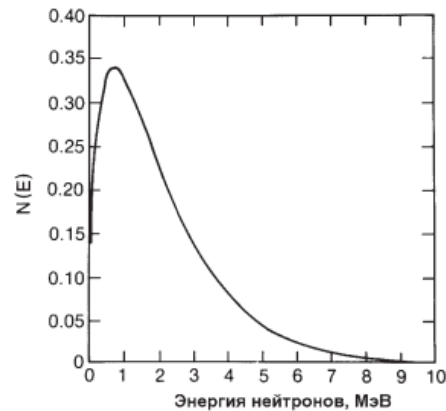


Рис. 4.3.18. Спектр мгновенных нейтронов спонтанного деления  $^{252}\text{Cf}$ , рассчитанный из распределения Максвелла

Число нейтронов, испускаемых при спонтанном или вынужденном делении, называется множественностью. При вынужденном делении нейтронов множественность медленно и линейно увеличивается с ростом энергии нейтрона. В разных актах деления множественность нейтронов может изменяться от 0 до 6 или более в зависимости от распределения энергии возбуждения между осколками деления. Распределение 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:

$$P(\nu) = \frac{1}{\sqrt{2\pi\sigma^2}} e^{-\frac{(\nu-\bar{\nu})^2}{2\sigma^2}}, \quad (4.3.15)$$

где ширина распределения  $\sigma$ , равная 1,08, может использоваться при аппроксимации для всех изотопов, за исключением  $^{252}\text{Cf}$ , для которого следует использовать  $\sigma$ , равную 1,21.

Данные о распределении множественности нейтронов в процессе деления используются при анализе совпадений (см. раздел 4.8.1). Имеющиеся экспериментальные данные свидетельствуют о том, что средняя энергия испущенных нейтронов приблизительно постоянна, а число испускаемых нейтронов увеличивается вместе с количеством имеющейся энергии. Таким образом, средняя энергия практически не зависит от множественности.

### **Запаздывающие нейтроны**

Запаздывающие нейтроны испускаются некоторыми изотопами, возникающими в результате бета-распада осколков деления вне зависимости от того, являются они результатом спонтанного или вынужденного деления. Запаздывающие нейтроны излучаются сильно возбужденными изотопами по мере их образования. Таким образом, они появляются в соответствии с периодами полураспада, характерными для изотопов-предшественников. Хотя имеется много таких изотопов, запаздывающие нейтроны можно разделить на шесть групп (см. раздел 3.1.2 курса NS3 «Ядерная энергия, ядерный топливный цикл и прикладные ядерные технологии»). 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, но на практике это трудно реализовать. Энергетические спектры запаздывающих нейтронов сильно структурированы в отличие от гладких максвелловских спектров мгновенных нейтронов (рис. 4.3.19). 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 не более 1 % от числа мгновенных нейтронов. Таким образом, они не оказывают заметного влияния на результаты большинства пассивных и активных измерений ядерных материалов.

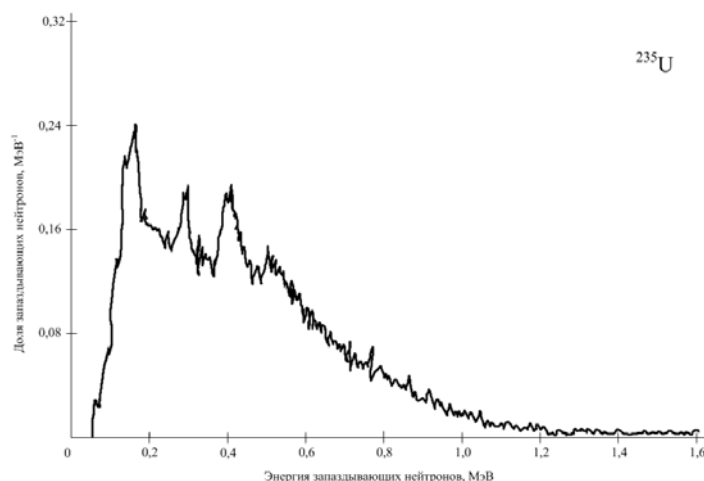


Рис. 4.3.19. Спектр запаздывающих нейтронов деления  $^{235}\text{U}$

Благодаря отделению потока запаздывающих нейтронов и мгновенной составляющей, были развиты самостоятельные методы анализа ядерных материалов, имеющие свою область применения (см. раздел 4.3.4).

### **Нейтроны, испускаемые в реакциях ( $\alpha, n$ )**

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. 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. 4.3.6 приведены вероятности альфа-распада некоторых тяжелых элементов. Полные периоды полураспада изотопов, перечисленных в таблице, почти совпадают с периодом альфа-распада, за исключением  $^{241}\text{Pu}$  и  $^{249}\text{Bk}$ , для которых доминирует бета-распад, и  $^{252}\text{Cf}$ , интенсивность спонтанного деления которого составляет около 3 % от интенсивности альфа-распада.

Процесс альфа-распада сопровождается испусканием фотонов гамма-излучения неустойчивыми дочерними ядрами. Кроме того, альфа-частицы могут приводить к образованию нейтронов, вступая в реакции ( $\alpha, n$ ) с некоторыми элементами. Этот источник нейтронов можно сравнить по интенсивности со спонтанным делением при наличии изотопов с высокими

вероятностями альфа-распада, таких, например, как  $^{233}\text{U}$ ,  $^{234}\text{U}$ ,  $^{238}\text{Pu}$  или  $^{241}\text{Am}$ . В данном разделе описано образование нейтронов в результате реакций  $(\alpha, n)$  и даны общие правила для расчета ожидаемого выхода нейтронов.

Таблица 4.3.6 Характеристики и выход нейтронов в  $(\alpha, n)$  реакции

Изотоп $A$	Полный период полураспада	Период полураспада для альфа- распада	Выход альфа- частиц, $\alpha/\text{с}\cdot\text{г}$	Средняя энергия альфа-частиц, МэВ	Выход нейтронов в реакции $(\alpha, n)$ в оксиде, нейтрон/с·г
$^{232}\text{Th}$	$1,41 \cdot 10^{10}$ г.	$1,41 \cdot 10^{10}$ г.	$4,1 \cdot 10^3$	4,00	$2,2 \cdot 10^{-5}$
$^{232}\text{U}$	71,7 г.	71,7 г.	$8,0 \cdot 10^{11}$	5,30	$1,49 \cdot 10^4$
$^{233}\text{U}$	$1,59 \cdot 10^5$ г.	$1,59 \cdot 10^5$ г.	$3,5 \cdot 10^8$	4,82	4,8
$^{234}\text{U}$	$2,45 \cdot 10^5$ г.	$2,45 \cdot 10^5$ г.	$2,3 \cdot 10^8$	4,76	3,0
$^{235}\text{U}$	$7,04 \cdot 10^8$ г.	$7,04 \cdot 10^8$ г.	$7,9 \cdot 10^4$	4,40	$7,1 \cdot 10^{-4}$
$^{236}\text{U}$	$2,34 \cdot 10^7$ г.	$2,34 \cdot 10^7$ г.	$2,3 \cdot 10^6$	4,48	$2,4 \cdot 10^{-2}$
$^{238}\text{U}$	$4,47 \cdot 10^9$ г.	$4,47 \cdot 10^9$ г.	$1,2 \cdot 10^4$	4,19	$8,3 \cdot 10^{-5}$
$^{237}\text{Np}$	$2,14 \cdot 10^6$ г.	$2,14 \cdot 10^6$ г.	$2,6 \cdot 10^7$	4,77	$3,4 \cdot 10^{-1}$
$^{238}\text{Pu}$	87,74 г.	87,74 г.	$6,4 \cdot 10^{11}$	5,49	$1,34 \cdot 10^4$
$^{239}\text{Pu}$	$2,41 \cdot 10^4$ г.	$2,41 \cdot 10^4$ г.	$2,3 \cdot 10^9$	5,15	$3,81 \cdot 10^1$
$^{240}\text{Pu}$	$6,56 \cdot 10^3$ г.	$6,56 \cdot 10^3$ г.	$8,4 \cdot 10^9$	5,15	$1,41 \cdot 10^2$
$^{241}\text{Pu}$	14,35 г.	$5,90 \cdot 10^5$ г.	$9,4 \cdot 10^7$	4,89	1,3
$^{242}\text{Pu}$	$3,76 \cdot 10^5$ г.	$3,76 \cdot 10^5$ г.	$1,4 \cdot 10^8$	4,90	2,0
$^{241}\text{Am}$	433,6 г.	433,6 г.	$1,3 \cdot 10^{11}$	5,48	$2,69 \cdot 10^3$
$^{242}\text{Cm}$	163 дня	163 дня	$1,2 \cdot 10^{14}$	6,10	$3,76 \cdot 10^6$
$^{244}\text{Cm}$	18,1 г.	18,1 г.	$3,0 \cdot 10^{12}$	5,80	$7,73 \cdot 10^4$
$^{249}\text{Bk}$	320 дней	$6,1 \cdot 10^4$ г.	$8,8 \cdot 10^8$	5,40	$1,8 \cdot 10^1$
$^{252}\text{Cf}$	2,646 г.	2,731 г.	$1,9 \cdot 10^{13}$	6,11	$6,0 \cdot 10^5$

Альфа-частица, испускаемая ураном или плутонием, имеет энергию в диапазоне от 4 до 6 МэВ. Поскольку  $^{234}\text{U}$  является доминирующим альфа-излучателем в обогащенном уране, средняя энергия альфа-частиц, испускаемых ураном, составляет 4,7 МэВ (см. табл. 4.3.6). 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. 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  $(\alpha, n)$ . Однако, если такие элементы, как кислород или фтор, смешаны с альфа-излучающим ядерным материалом, реакция  $(\alpha, n)$  становится возможной.

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 представить в лабораторной системе координат, она будет называться пороговой энергией:

Пороговая энергия =  $-Q(1 + 4/A)$ , если  $Q$  – отрицательная;

Пороговая энергия = 0, если  $Q$  – положительная.

Кулоновский барьер – это сила электростатического отталкивания, которую альфа-частица должна преодолеть для того, чтобы войти в ядро-мишень и взаимодействовать с ним.

$$\text{Кулоновский барьер (МэВ)} = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{r_0 (A_1^{1/3} + A_2^{2/3})}, \quad (4.3.16)$$

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. Таким образом, реакция  $(\alpha, n)$  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. В табл. 4.3.7 эти свойства обобщаются для ядер изотопов с малой массой.

Таблица 4.3.7 Значения энергии реакции  $Q$ , пороговой энергии и кулоновского барьера реакции  $(\alpha, n)$

Изотоп	Распространенность изотопа в природной смеси, %	Значение энергии реакции $Q$ , МэВ	Пороговая энергия, МэВ	Кулоновский барьер, МэВ
<sup>4</sup> He	100	-18,99	38,0	1,5
<sup>6</sup> Li	7,5	-3,70	6,32	2,1
<sup>7</sup> Li	92,5	-2,79	4,38	2,1
<sup>9</sup> Be	100	+5,7	0	2,6
<sup>10</sup> B	19,8	+1,06	0	3,2
<sup>11</sup> B	80,2	+0,16	0	3,2
<sup>12</sup> C	98,9	-8,51	11,34	3,7
<sup>13</sup> C	1,11	+2,22	0	3,7
<sup>14</sup> N	99,6	-4,73	6,09	4,1
<sup>15</sup> N	0,4	-6,42	8,13	4,1
<sup>16</sup> O	99,8	-12,14	15,2	4,7
<sup>17</sup> O	0,04	+0,59	0	4,6
<sup>18</sup> O	0,2	-0,70	0,85	4,6
<sup>19</sup> F	100	-1,95	2,36	5,1
<sup>20</sup> Ne	90,9	-7,22	8,66	5,6
<sup>21</sup> Ne	0,3	+2,55	0	5,5
<sup>22</sup> Ne	8,8	-0,48	0,57	5,5
<sup>23</sup> Na	100	-2,96	3,49	6,0
<sup>24</sup> Mg	79	-7,19	8,39	6,4
<sup>25</sup> Mg	10,0	+2,65	0	6,4
<sup>26</sup> Mg	11,0	+0,03	0	6,3
<sup>27</sup> Al	100	-2,64	3,03	6,8
<sup>29</sup> Si	4,7	-1,53	1,74	7,2
<sup>30</sup> Si	3,1	-3,49	3,96	7,2
<sup>37</sup> Cl	24,2	-3,87	4,29	8,3

Исходя из данных, приведенных в табл. 4.3.7 следует, что реакции  $(\alpha, n)$  с альфа-частицами, обладающими энергией 5,2 МэВ, возможны на 11 элементах с низким атомным номером. Для всех элементов с атомным номером больше, чем у хлора, реакция энергетически невозможна.

В табл. 4.3.8 приведен наблюдаемый выход нейтронов в результате реакций  $(\alpha, n)$  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. Длина пробега альфа-частиц в твердых телах составляет примерно 0,01 см.

Реакции  $(\alpha, n)$  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 приведен в последнем столбце табл. 4.3.6. 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).

Таблица 4.3.8. Выходы нейтронов из толстой мишени при реакциях  $(\alpha, n)$

Элемент (природный изотопный состав)	Выход нейтронов на $10^6$ альфа-частиц с энергией 4,7 МэВ ( $^{234}\text{U}$ )	Выход нейтронов на $10^6$ альфа-частиц с энергией 5,2 МэВ (средн. Pu)
Li	$0,16 \pm 0,004$	$1,13 \pm 0,25$
Be	$44 \pm 4$	$65 \pm 5$
B	$12,4 \pm 0,6$	$17,5 \pm 0,4$
C	$0,051 \pm 0,002$	$0,078 \pm 0,004$
O	$0,040 \pm 0,001$	$0,059 \pm 0,002$
F	$3,1 \pm 0,3$	$5,9 \pm 0,6$
Na	$0,5 \pm 0,5$	$1,1 \pm 0,5$
Mg	$0,42 \pm 0,03$	$1,89 \pm 0,02$
Al	$0,13 \pm 0,01$	$1,41 \pm 0,01$
Si	$0,028 \pm 0,002$	$1,076 \pm 0,003$
Cl	$0,01 \pm 0,01$	$0,07 \pm 0,04$

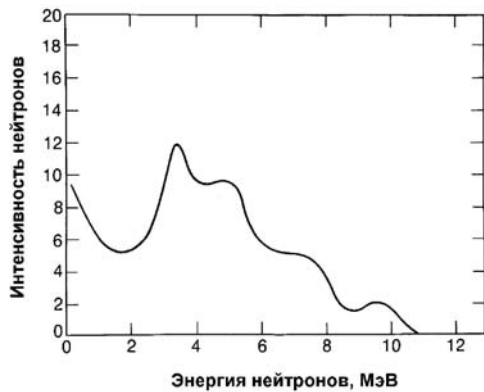


Рис. 4.3.20. Энергетический спектр нейтронов источника  $\text{AmBe}$

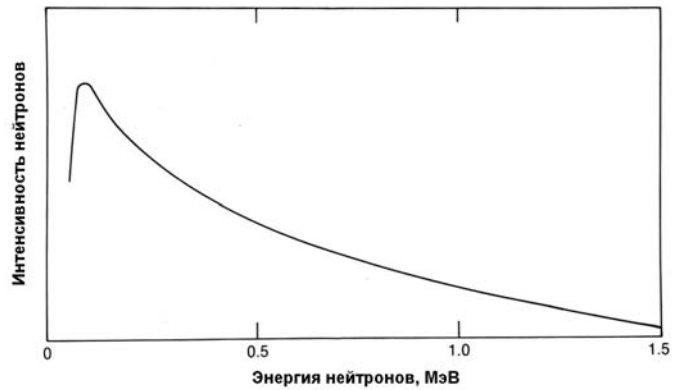


Рис. 4.3.21. Энергетический спектр нейтронов источника  $\text{AmLi}$

Энергия нейтрона, испущенного при реакции  $(\alpha, n)$ , зависит от энергии, которую альфа-частица имеет в момент реакции, и от значения энергии реакции  $Q$ . Нейтронные спектры некоторых источников показаны на рис. 4.3.20, 4.3.21.

Важной характеристикой реакций  $(\alpha, n)$  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 для достижения избирательности между нейтронами спонтанного деления и нейтронами  $(\alpha, n)$ -реакций (см. раздел 4.8).

### Нейтроны других реакций

Спонтанное деление, вынужденное деление и реакции  $(\alpha, n)$  являются первичными источниками нейтронов, наблюдаемых при пассивных измерениях. Однако другие реакции, например, такие как  $(\gamma, n)$ ,  $(n, n\gamma)$  и  $(n, 2n)$ , могут иметь место в образце или детектирующей системе и влиять на наблюдаемую скорость счета. Перечень наиболее значимых реакций приведен в табл. 4.3.9. Учет таких реакций более важен при выполнении активных измерений неразрушающего анализа.

Реакция  $(\gamma, n)$  может образовать нейтроны в любом элементе, если энергия гамма-излучения достаточно высока. Обычно минимальная пороговая энергия ( $\sim 8$  МэВ) гораздо



больше, чем энергия гамма-квантов, излучаемых радиоактивными нуклидами. Однако, пороговые энергии реакции ( $\gamma, n$ ) 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, например, как  $^{124}\text{Sb}$  или  $^{226}\text{Ra}$ , оболочкой из бериллия или  $\text{D}_2\text{O}$ . При выполнении пассивного анализа необходимо помнить, что мгновенные гамма-кванты деления или гамма-кванты некоторых реакций ( $\alpha, n$ ), 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 (см. табл. 4.3.9).

Таблица 4.3.9 Ядерные реакции, влияющие на результат пассивного анализа

Источник излучения	Пороговая энергия, МэВ	Материал мишени	Реакция
Гамма-квант	1,665	Be	$(\gamma, n)$
Гамма-квант	2,224	D	$(\gamma, n)$
Нейтрон	0	H	$(n, \gamma)$
Протон	1,880	$^7\text{Li}$	$(p, n)$
Протон	1,019	T	$(p, n)$
Нейтрон	0,1–1,0	Pb	$(n, n\gamma)$
Нейтрон	0,1–1,0	W	$(n, n\gamma)$
Нейтрон	0,1–1,0	U	$(n, n\gamma)$
Нейтрон	1,851	Be	$(n, 2n)$
Нейтрон	3,338	D	$(n, 2n)$
Нейтрон	5,340	W	$(n, 2n)$

Неупругое рассеяние нейтронов ( $n, n\gamma$ ) может иметь место на тяжелых ядрах при энергии нейтронов от 0,1 до 1,0 МэВ или более. Эта реакция возможна, если ядро мишени имеет уровни энергии достаточно низкие для того, чтобы возбудиться нейтроном. Вероятность такой реакции невысока, и число нейтронов не меняется. Тем не менее, средняя энергия нейтронов 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.

#### NS4.3.4 Методы детектирования

Методы детектирования нейтронного излучения условно можно разбить на несколько направлений, пересекающихся между собой технически и методически, а также взаимно дополняющих друг друга. Во-первых, это регистрация полного потока нейтронов с помощью счетных приборов, отличающихся типом используемых детекторов, геометрией измерений, а также наличием дополнительных устройств и материалов в зависимости от потребностей анализа и типа исследуемого образца. Во-вторых, методы, основанные на дискриминации счета нейтронов по временным характеристикам. В-третьих, спектрометрия нейтронного излучения, отличающаяся от остальных методов специфической и более сложной техникой, необходимой для проведения анализа.

Другая классификация методов основана на разделении двух основных подходов в создании систем для измерения ядерных материалов – пассивного и активного. При этом под пассивными методами понимается измерение потока нейтронов, генерируемого ядерным материалом без дополнительного внешнего воздействия. В активных методах используется внешнее воздействие на ядерный материал, как правило, облучение источником нейтронов (см. раздел 4.3.5). Активные методы имеют свои преимущества, так как позволяют увеличивать интенсивности нейтронного излучения исследуемого образца.

Кроме того, методы делятся на разрушающие и неразрушающие. Это деление также является достаточно условным, так как многие разрушающие методы используют для измерений технику неразрушающего анализа. Разрушение материалов связано с применением радиохимических методик, о которых речь пойдет в разделе 4.7.1. курса NS4. В данном разделе учебного пособия к курсу рассматриваются только методики неразрушающего анализа.

### ***Измерение полного потока нейтронов***

Методика измерения полного потока нейтронов используется для анализа любых соединений урана и плутония, при условии того, что их изотопный и элементный составы являются известными. С ее помощью осуществляется контроль над технологическими процессами, а также учет количества ядерных материалов на производстве и определение выгорания топлива на атомных станциях. Кроме того, активные и пассивные методы контроля измерения полного потока нейтронов, реализованные в форме портальных систем различных размеров, используются для обнаружения ядерных материалов в системах физической защиты на промышленных объектах и в транспортных узлах. Нейтронное сканирование грузов позволяет также определять возможность наличия в них скрытых взрывчатых веществ. Обсуждение перечисленных технологий является предметом не только данного учебного пособия, в котором изложены основные методические принципы, но и различных специальных курсов обучения по магистерской специальности Nuclear Security (NS13, NS9, NS16, NS18).

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, например, нейтронных совпадений.

Принципиальная схема системы регистрации полного потока нейтронов состоит из устройств, представленных на рис. 4.3.22. 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 отсекал импульсы с малой амплитудой от сопутствующего гамма-излучения, а также электромагнитных помех и шумов, и достаточно мало для того, чтобы зарегистрировать импульсы, вызванные нейтронами. Спектры амплитуд импульсов 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 (см. раздел, посвященный спектрометрии нейтронного излучения).



*Рис. 4.3.22. Основные компоненты простой системы регистрации полного потока нейтронов*

В данном разделе представлены основные принципы применения регистрации полного потока нейтронов, в основном, в отношении пассивного анализа ядерных материалов. Этот вид анализа чаще других используется для измерения полного потока нейтронов. В качестве примеров рассматриваются пропорциональные счетчики  $^3\text{He}$  с предварительным замедлением нейтронов в полиэтилене. Такие детекторы обычно применяются в практике регистрации нейтронов на ядерных установках во всем мире.

Скорость счета полного потока нейтронов определяется простой формулой:

$$T = \varepsilon M_L S, \quad (4.3.17)$$

где  $T$  – скорость счета полного потока нейтронов, имп./с;

$\varepsilon$  – полная эффективность регистрации, имп./нейтрон;

$M_L$  – коэффициент умножения нейтронов утечки в образце, отн. ед.;

$S$  – интенсивность первичного излучения нейтронов в образце, нейтрон/с.

Полная эффективность регистрации  $\varepsilon$  – 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.

Изложение данного раздела основано на обсуждении факторов, воздействующих на величины уравнения  $S$ ,  $M_L$  и  $\varepsilon$ , а также их влияние на методику измерения полного потока нейтронов.

Первым из трех важных факторов, влияющих на регистрацию полного потока нейтронов, является образование первичных нейтронов в образце. Первичные нейтроны образуются в результате реакции  $(\alpha, n)$  и спонтанного деления; вторичные – в результате вынужденного деления. Вынужденное деление и поглощение нейтронов в образце рассматриваются обычно вместе и называются размножением нейтронов в образце.

Таблица 4.3.10. Интенсивность образования первичных нейтронов для трех изотопных составов плутония

Изотоп	Количество, вес.%	Интенсивность образования нейтронов для 100 г плутония, нейтрон/с		
		Металл (спонтанное деление)	PuO <sub>2</sub> (( $\alpha, n$ ) - реакция)	PuF <sub>4</sub> (( $\alpha, n$ ) - реакция)
<sup>238</sup> Pu	0,024	62	322	52800
<sup>239</sup> Pu	89,667	2	3416	502135
<sup>240</sup> Pu	9,645	9338	1360	202545
<sup>241</sup> Pu	0,556	0	1	95
<sup>242</sup> Pu	0,109	187	0	29
<sup>241</sup> Am	0,327*	0	880	144417
	<i>Итого:</i>	<i>10089</i>	<i>5979</i>	<i>902021</i>
<sup>238</sup> Pu	0,059	153	791	129800
<sup>239</sup> Pu	82,077	2	3127	459631
<sup>240</sup> Pu	16,297	16623	2298	342237
<sup>241</sup> Pu	1,231	0	2	209
<sup>242</sup> Pu	0,336	578	1	91
<sup>241</sup> Am	0,162*	0	436	71546
	<i>Итого:</i>	<i>17356</i>	<i>6655</i>	<i>1003514</i>
<sup>238</sup> Pu	1,574	4077	21092	3462800
<sup>239</sup> Pu	57,342	1	2185	321115
<sup>240</sup> Pu	24,980	25480	3522	524580
<sup>241</sup> Pu	10,560	0	14	1795
<sup>242</sup> Pu	5,545	9537	11	1497
<sup>241</sup> Am	1,159*	1	3118	511863
	<i>Итого:</i>	<i>39096</i>	<i>29942</i>	<i>48236550</i>

\*) – весовое содержание <sup>241</sup>Am дано в процентах относительно плутония.

В разделе 4.3.3 было дано описание физических процессов образования первичных нейтронов и значений выходов нейтронов из изотопов актинидов в результате спонтанного

деления и реакции  $(\alpha, n)$ . В данном 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 их потери за счет поглощения. Эти вопросы рассматриваются в следующих подразделах.

При использовании полного потока нейтронов в качестве счетной характеристики одного или нескольких изотопов урана и плутония, необходимо знать химическую форму и изотопный состав образца. Это положение может быть проиллюстрировано примерами. В качестве примеров рассматриваются результаты измерения образцов плутония массой 100 г в форме металла,  $\text{PuO}_2$  и  $\text{PuF}_4$ . Перечисленные соединения наиболее часто встречаются в рамках существующего ядерного топливного цикла.

Кроме того, так как состав плутония может быть различным, в зависимости от типа реактора, на котором он был получен и длительности кампании, то для указанных образцов используется три различных изотопных состава. Выбранный изотопный состав представляет топливо легководных реакторов низкой, средней и высокой глубины выгорания.

В табл. 4.3.10 представлена интенсивность образования нейтронов для каждого изотопа, процесса образования нейтронов и формы образца. Эта интенсивность рассчитана на основе данных по выходу нейтронов, представленных в разделе 4.3.3. Образование нейтронов при спонтанном делении зависит от изотопного состава образца, но не зависит от его химической формы. Образование же нейтронов при реакциях  $(\alpha, n)$  зависит от того и другого.

На основании данных, приведенных в табл. 4.3.10, могут быть сделаны следующие выводы:

1. Для металлического плутония, который не имеет  $(\alpha, n)$ -компоненты, образование первичных нейтронов определяется изотопом  $^{240}\text{Pu}$  (98, 96 и 65 % для трех изотопных составов плутония). Полный поток нейтронов металлического плутония является характеристикой эффективной массы изотопа  $^{240}\text{Pu}$  ( $^{240}\text{Pu}_{\text{эфф}}$ ), где

$$^{240}\text{Pu}_{\text{эфф}} = 2,43(^{238}\text{Pu}) + ^{240}\text{Pu} + 1,69(^{242}\text{Pu}). \quad (4.3.18)$$

Коэффициенты 2,43 и 1,69 учитывают более высокое удельное (на грамм) образование нейтронов в изотопах  $^{238}\text{Pu}$  и  $^{242}\text{Pu}$  при спонтанном делении по отношению к  $^{240}\text{Pu}$ . Таким образом, если изотопный состав плутония известен, полная его масса может быть определена на основании определения  $^{240}\text{Pu}_{\text{эфф}}$ , полученного при градуировке интенсивности счета полного потока нейтронов. Другими словами, принимая коэффициент умножения равным 1, получим выражение:

$$T = \varepsilon \cdot S = k_0 ^{240}\text{Pu}_{\text{эфф}} = k_1 \text{Pu}, \quad (4.3.19)$$

где  $k_0$  и  $k_1$  – эмпирические постоянные;

$^{240}\text{Pu}_{\text{эфф}}$  и  $\text{Pu}$  – массы  $^{240}\text{Pu}_{\text{эфф}}$  и плутония, соответственно.

2. Для  $\text{PuO}_2$  отношение числа нейтронов, образованных в результате  $(\alpha, n)$ -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  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$  и  $^{241}\text{Am}$  вносят значительный вклад в образование нейтронов при реакции  $(\alpha, n)$  в  $\text{PuO}_2$ . Полное образование потока нейтронов в  $\text{PuO}_2$  описывается общим уравнением следующего вида:

$$S = a_1(^{238}\text{Pu}) + a_2(^{239}\text{Pu}) + a_3(^{240}\text{Pu}) + a_4(^{242}\text{Pu}) + a_5(^{241}\text{Am}), \quad (4.3.20)$$

где множители  $a_1 - a_5$  – удельные интенсивности образования нейтронов в  $\text{PuO}_2$ , как для спонтанного деления, так и  $(\alpha, n)$ -реакции, а величины в скобках являются массами изотопов плутония. Множители определяются для каждого изотопа на основе выхода нейтронов  $(\alpha, n)$ -реакции и спонтанного деления. Если они известны, то полная масса плутония может быть определена из формулы

$$T = \varepsilon \cdot S = k_2 \text{Pu}, \quad (4.3.21)$$

где  $k_2$  – эмпирическая постоянная;  $\text{Pu}$  – масса плутония.

3. Для PuF<sub>4</sub> в ( $\alpha, n$ )-реакциях для всех трех изотопных составов образуется более чем 98 % нейтронов. Как правило, образование нейтронов в PuF<sub>4</sub> описывается уравнением, похожим на уравнение 4.3.20:

$$S = a_6(^{238}\text{Pu}) + a_7(^{239}\text{Pu}) + a_8(^{240}\text{Pu}) + a_9(^{241}\text{Am}), \quad (4.3.22)$$

где множители  $a_6 - a_9$  являются удельными интенсивностями образования нейтронов для PuF<sub>4</sub> в ( $\alpha, n$ )-реакциях при небольших количествах компонентов от спонтанного деления. Как и в случае с PuO<sub>2</sub>, если изотопы плутония известны, полная масса плутония может быть определена путем регистрации полного потока нейтронов из PuF<sub>4</sub>, применяя простую (без учета размножения) формулу:

$$T = \varepsilon \cdot S = k_3 \text{Pu}, \quad (4.3.23)$$

где постоянная  $k_3$  должна быть определена эмпирически.

Таблица 4.3.11. Интенсивность источников первичных нейтронов в металлическом уране и его соединениях для различных изотопных составов ВОУ

Изотоп	Количество, вес. %	Интенсивность образования нейтронов в металлическом уране и его соединениях для различного изотопного состава ВОУ			
		Металл (спонтанное деление)	UO <sub>2</sub> F <sub>2</sub> ( $\alpha, n$ )-реакция)	UO <sub>2</sub> ( $\alpha, n$ )-реакция)	UF <sub>6</sub> ( $\alpha, n$ )-реакция)
<sup>234</sup> U	0,1404	0	42	2583	8143
<sup>235</sup> U	31,71	1	2	114	254
<sup>236</sup> U	0,3506	0	1	42	102
<sup>238</sup> U	67,80	92	1	119	190
	<i>Итого:</i>	93	46	2858	8689
<sup>234</sup> U	0,2632	0	79	4842	15265
<sup>235</sup> U	57,38	2	4	207	459
<sup>236</sup> U	0,5010	0	1	60	145
<sup>238</sup> U	41,86	57	0	73	117
	<i>Итого:</i>	59	84	5184	15986
<sup>234</sup> U	0,3338	0	100	6142	19360
<sup>235</sup> U	69,58	2	5	250	557
<sup>236</sup> U	0,5358	0	1	64	155
<sup>238</sup> U	29,55	40	0	52	83
	<i>Итого:</i>	42	106	6508	20155
<sup>234</sup> U	1,032	1	310	18989	59856
<sup>235</sup> U	97,65	3	7	352	781
<sup>236</sup> U	0,2523	0	1	30	73
<sup>238</sup> U	1,07	1	0	2	3
	<i>Итого:</i>	5	318	19373	60713

Для данных, представленных в табл. 4.3.10, значения для изотопа <sup>241</sup>Am были взяты эмпирические, из результатов анализов. <sup>241</sup>Am является дочерним изотопом <sup>241</sup>Pu. Содержание <sup>241</sup>Am увеличивается со временем, так как период его полураспада превышает период полураспада <sup>241</sup>Pu.

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. 4.3.11 и 4.3.12. Рассмотрены образцы урана массой 10 кг в виде металла, UO<sub>2</sub>, UO<sub>2</sub>F<sub>2</sub> и UF<sub>6</sub>. В табл. 4.3.11 представлены данные по низкообогащенному урану (НОУ) с обогащением по изотопу <sup>235</sup>U: 0,2; 0,7; 3,0 и 18,2 % (первое и второе значения – это обедненный и природный уран, соответственно). В табл. 4.3.12 представлены данные по высокообогащенному урану (ВОУ) с обогащением по изотопу <sup>235</sup>U: 31,7; 57,4; 69,6 и 97,6 %. Интенсивности нейтронов при спонтанном делении и ( $\alpha, n$ )-реакциях для каждого обогащения

определяются изотопным составом и химической формой. Эти интенсивности рассчитаны на основе данных по выходу нейтронов из раздела 4.3.3.

Таблица 4.3.12. Интенсивность источников первичных нейтронов в металлическом уране и его соединениях для различных изотопных составов НОУ

Изотоп	Количество, вес. %	Интенсивность образования нейтронов в металлическом уране и его соединениях для различного изотопного состава НОУ			
		Металл (спонтанное деление)	UO <sub>2</sub> F <sub>2</sub> (( $\alpha$ , n) – реакция)	UO <sub>2</sub> (( $\alpha$ , n) – реакция)	UF <sub>6</sub> (( $\alpha$ , n) – реакция)
<sup>234</sup> U	0,0005	0	0	9	29
<sup>235</sup> U	0,1977	0	0	1	2
<sup>236</sup> U	0,0036	0	0	0	1
<sup>238</sup> U	99,8	136	1	175	279
	<i>Итого:</i>	<i>136</i>	<i>1</i>	<i>185</i>	<i>311</i>
<sup>234</sup> U	0,0049	0	1	90	284
<sup>235</sup> U	0,7108	0	0	3	6
<sup>236</sup> U	-	-	-	-	-
<sup>238</sup> U	99,28	135	1	174	278
	<i>Итого:</i>	<i>135</i>	<i>2</i>	<i>267</i>	<i>568</i>
<sup>234</sup> U	0,0244	0	7	449	1415
<sup>235</sup> U	3,001	0	0	11	24
<sup>236</sup> U	0,0184	0	0	2	5
<sup>238</sup> U	96,96	132	1	170	271
	<i>Итого:</i>	<i>132</i>	<i>8</i>	<i>632</i>	<i>1715</i>
<sup>234</sup> U	0,0865	0	26	1592	5017
<sup>235</sup> U	18,15	1	1	65	145
<sup>236</sup> U	0,2313	0	1	28	67
<sup>238</sup> U	96,96	11	1	143	228
	<i>Итого:</i>	<i>112</i>	<i>29</i>	<i>1828</i>	<i>5457</i>

На основании данных, приведенных в табл. 4.3.11, 4.3.12, могут быть сделаны следующие выводы:

1. Спонтанное деление <sup>238</sup>U является доминирующим фактором при образовании нейтронов в металлическом уране с обогащением по изотопу <sup>235</sup>U ниже 70 %. Этот факт позволяет анализировать <sup>238</sup>U в крупных образцах металлического урана методом регистрации полного потока нейтронов во всех случаях, за исключением высокого обогащения по <sup>235</sup>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 <sup>238</sup>U в сочетании с обогащением <sup>235</sup>U используется для определения полного количества металлического урана в низкообогащенном материале. Эта зависимость имеет вид:

$$T = \varepsilon \cdot S = k_4 {}^{238}\text{U} = k_5 U, \quad (4.3.24)$$

где  $k_4$  и  $k_5$  – эмпирические постоянные.

2. Для UO<sub>2</sub> полное образование нейтронов (спонтанное деление плюс ( $\alpha$ , n)-реакция) является приблизительно постоянным для обогащения менее 60 %. С ростом обогащения составляющая спонтанного деления уменьшается по мере увеличения составляющей реакции ( $\alpha$ , n). При обогащении более 60 % составляющая реакции ( $\alpha$ , n) быстро растет. Альфа-распад <sup>234</sup>U является преобладающим источником реакций ( $\alpha$ , n) в UO<sub>2</sub> с обогащением 3 % или выше. Полный поток нейтронов в UO<sub>2</sub> в общем виде описывается формулой:

$$S = b_1({}^{234}\text{U}) + b_2({}^{235}\text{U}) + b_3({}^{238}\text{U}), \quad (4.3.25)$$

где  $b_1 - b_3$  – удельные интенсивности образования нейтронов как для спонтанного деления, так и реакций ( $\alpha$ , n) в UO<sub>2</sub>, 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:

$$T = \varepsilon \cdot S = k_6 U, \quad (4.3.26)$$

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 тому подобное), 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.

3. Для  $UO_2F_2$  (продукт химической реакции  $UF_6$  и воды) образование нейтронов определяется преимущественно  $(\alpha, n)$ -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 4.3.25 и 4.3.26, 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.

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  $UO_2F_2$ . Из-за дополнительного фтора в таком соединении преобладает реакция  $(\alpha, n)$ . Для произвольного значения обогащения образование полного потока нейтронов в  $UF_6$  также определяется уравнением, аналогичным 4.3.25. Последующая градуировка проводится по уравнениям типа 4.3.26.

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  $4\pi$ -геометрии («колодезные» счетчики). Измерения крупных баллонов осуществляются портативными счетчиками. Для крупных баллонов с низкообогащенным ураном градуировочные характеристики получаются более простыми, чем в уравнениях 4.3.25 и 4.3.26, предполагая постоянными величину весового содержания изотопа  $^{238}U$  и отношение  $^{235}U$  к  $^{234}U$ .

Соединения плутония и урана в ядерном топливном цикле очень редко встречаются полностью свободными от примесей, которые могут значительно искажать образование первичных нейтронов. Особенно часто встречаются примеси воды и фтора. На рис. 4.3.23 показаны значения  $S(\alpha, n)$  для влажного  $PuO_2$  по сравнению с сухим оксидом в зависимости от содержания  $H_2O$ . Данные, приведенные на графике, свидетельствуют о необходимости учитывать содержание воды в топливе. Необходимо также 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 воздействующим фактором является фтор, влияющий на изменение  $S(\alpha, n)$ . На рис. 4.3.24 приведена зависимость  $S(\alpha, n)$  от примеси фтора в  $PuO_2$  (16 %  $^{240}Pu$ ) с содержанием 1 и 9 весовых % воды. Вода и примеси фтора влияют на образование нейтронов в  $(\alpha, n)$ -реакции, но не влияют на образование нейтронов при спонтанном делении. Если содержание воды и фтора известны,

то данные, показанные на рис. 4.3.23 и 4.3.24, могут быть использованы для корректировки параметров градуировки при анализе методом регистрации полного потока нейтронов. Приведенные данные были получены расчетным путем.

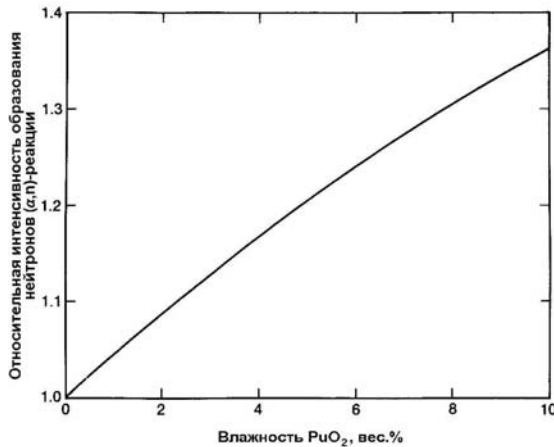


Рис. 4.3.23. Зависимость образования нейтронов при  $(\alpha, n)$ -реакциях во влажном  $PuO_2$  по отношению к сухому  $PuO_2$  от количества влаги (данные для изотопных составов 10, 16 и 25 %  $^{240}Pu$  ложатся на одну кривую)

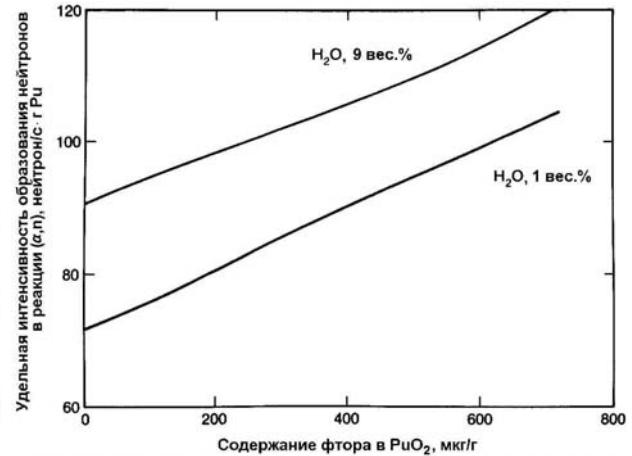


Рис. 4.3.24. Удельная интенсивность образования нейтронов в  $(\alpha, n)$ -реакциях в  $PuO$  в зависимости от количества примесей фтора для изотопного состава с 10 %  $^{240}Pu$  (1 и 9 вес. % воды)

Спектр нейтронов  $(\alpha, n)$ -реакции и спонтанного деления исследуемого образца может изменяться под воздействием примесей (влажности и фтора) в сторону ужесточения или смягчения. Такие изменения потенциально могут повлиять на процесс регистрации. Однако на практике изменения оказываются незначительными и заметного влияния на процессы в регистрирующей системе не оказывают.

Если плотность и размеры образца достаточно малы («тонкий» образец), то образование нейтронов снижается, так как некоторые альфа-частицы получают возможность покинуть его не вступая в  $(\alpha, n)$ -реакцию с изотопами мишени. Такая ситуация реализуется, например, при измерениях небольших объемов газообразного  $UF_6$ . Снижение потока нейтронов может быть оценено с помощью расчетных методов. После того, как определено количество нейтронов, образующихся в образце, необходимо установить их количество, которое образец покидает. Это количество называют утечкой или интенсивностью излучения образца. Утечка нейтронов может быть рассчитана путем решения уравнения переноса. Наиболее эффективным методом для этого является использование расчетных методов Монте-Карло, рассмотрение которых не входит в содержание данного учебного пособия. Кроме точных расчетных методов оценка утечки может быть сделана с помощью инженерных оценок. Один из часто используемых методов инженерной оценки основан на определении коэффициента умножения нейтронов. Число нейтронов, вылетающих из образца, отнесенное к одному образованному первичному нейтрону, называется умножением нейтронов утечки в образце  $M_L$ . Величина  $M_L$  отличается от полного умножения ( $M$ ), которое представляет 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 реакциях паразитного захвата.

Нейтрон данного поколения может вызвать деление с вероятностью  $p$  и исчезнуть с вероятностью  $1 - p$ . Так как суммарная вероятность всех событий должна нормироваться на 1, то:

$$p + p_c + p_L = 1, \quad (4.3.27)$$

где  $p$  – вероятность того, что нейтрон вызовет деление;



$p_c$  – вероятность того, что нейтрон будет захвачен без деления;

$p_L$  – вероятность того, что нейтрон вылетит из образца (вероятность утечки).

Кроме того, число делений, произведенных в данном поколении, отнесенное к числу делений в предыдущем поколении, равно  $p\nu$ , где  $\nu$  – среднее число нейтронов, рожденных в одном акте вынужденного деления. Величина  $p\nu$  соответствует коэффициенту размножения  $k$  из физики реакторов (см. раздел 3.1.2 курса NS3).

Умножение нейтронов утечки  $M_L$  является полной чистой прибылью нейтронов от одного первичного нейтрона, умноженной на вероятность исчезновения, и может быть определено с помощью выражения:

$$M_L = \left( \frac{1-p}{1-p\nu} \right) \left( \frac{p_L}{p_L + p_c} \right) = \frac{p_L}{1-p\nu} = \frac{1-p-p_c}{1-p\nu}. \quad (4.3.28)$$

Соотношение между  $M_L$  и  $M$  составляет:

$$M_L = p_L M. \quad (4.3.29)$$

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 4.3.28, определяющее  $M_L$ , зависит от трех параметров:  $\nu$ ,  $p$  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. 4.3.25 показаны графики умножения нейтронов утечки  $M_L$  как функции вероятности деления  $p$ . Представлены две группы кривых. Нижняя группа трех кривых описывает урансодержащие образцы с  $\nu=2,5$ . Верхняя группа трех кривых с  $\nu=3,0$  описывает образцы, содержащие плутоний. В каждой группе кривых вероятность захвата  $p_c$  меняется от 0 до 0,02, то есть охватывает широкий диапазон образцов.

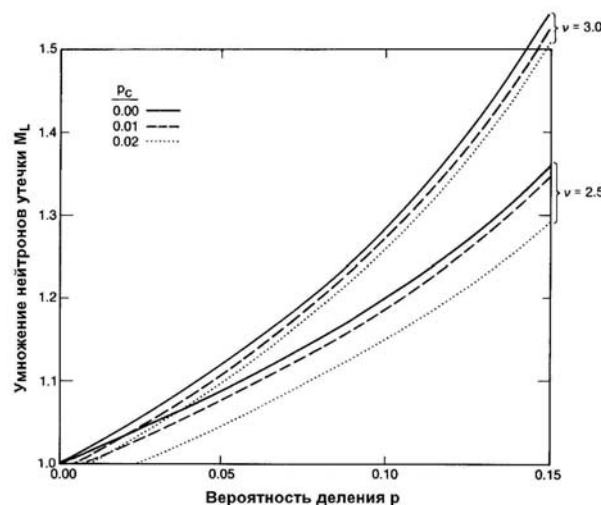


Рис. 4.3.25. Зависимость умножения нейтронов утечки  $M_L$  от вероятности деления для двух значений средней множественности нейтронов и трех значений вероятности захвата

Нейтроны, покидающие образец, имеют меньшую среднюю энергию по сравнению с первичными нейтронами, образованными при спонтанном делении или в реакциях  $(\alpha, n)$ . 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. Например, в спектре нейтронов утечки для баллона с  $UF_6$  массой 2273 кг, в котором обогащение по  $^{235}U$  составляет 2,5 %, средняя энергия нейтронов 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 паразитного захвата.

Ряд факторов активно влияет на эффективность регистрации нейтронов измерительной системой ( $\varepsilon$ ). 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. Например, при заданной геометрии замедлителя размещение и количество  $^3He$  пропорциональных счетчиков (или других детекторов) сильно влияет на эффективность регистрации нейтронов. В частности был выполнен ряд расчетов эффективности с использованием программы MCNP 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 %). 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. В результате расчетов было определено, 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. Приемлемое компромиссное решение для данного примера составило бы 16 гелиевых счетчиков. Выбор количества счетчиков также зависит от интенсивности излучения нейтронов из образца и желаемой точности измерений.

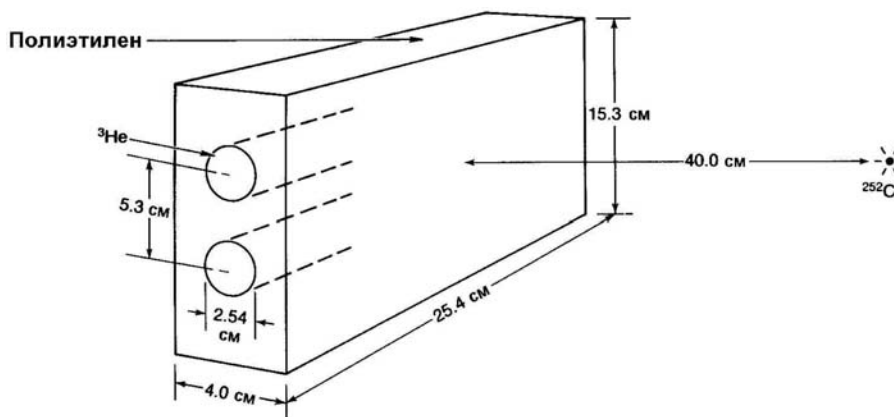


Рис. 4.3.26. Геометрия, используемая для серии вычислений эффективности детектора методом Монте-Карло.

Для определенного количества и расположения детекторов, расположение полиэтиленового замедлителя также может 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 4.3.26). 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  $^{252}Cf$  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. Спектр нейтронов источника

моделировался с помощью спектра деления Уатта. Выбранные параметры и геометрия пластины представляют типовые значения, встречающиеся в реальных детекторах нейтронов.

В результате вычислений было определено, что наиболее высокую эффективность регистрации обеспечивает конфигурация замедлителя с полиэтиленом толщиной 6 см перед гелиевыми счетчиками и толщиной 8 см за ними. 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.

Для конкретной конструкции детектора эффективность регистрации нейтронов будет зависеть от энергии падающего нейтрона, ввиду зависимости сечения реакции 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 фоновые нейтроны с отличающимися энергетическими спектрами.

#### ***Активный неразрушающий анализ***

Системы активного неразрушающего анализа (НРА) используются для анализа ядерных материалов в образцах, начиная от небольших, хорошо охарактеризованных топливных таблеток и заканчивая многолитровыми бочками с плохо охарактеризованными отходами. Некоторые системы были разработаны для специальных применений, например, для анализа содержания  $^{235}\text{U}$  в топливных стержнях в рамках производственного цикла. Другие системы были разработаны, чтобы анализировать различные по форме и размеру образцы и различные типы ядерных материалов. Основным преимуществом активных методов является возможность инициации нейтронного излучения в случаях, когда его естественный уровень слишком низок для выполнения анализов с необходимым качеством или отсутствует совсем.

Во всех системах активного НРА только часть излучения от облучающего источника достигает образца, и только часть излучения образца достигает системы детектирования. Поскольку в большинстве случаев невозможно рассчитывать эти доли с достаточной точностью, градуировка систем активного НРА основывается на измерении стандартных образцов. Эти стандартные образцы должны быть представительными для каждого анализируемого объекта. Обычно для каждого типа анализируемого материала имеется свой стандартный образец или набор стандартных образцов. В некоторых случаях, таких как анализ топливных стержней, обычно довольно просто получить стандартный образец, дублирующий анализируемый материал. В других случаях, таких как 200-литровые бочки с отходами, доступные стандартные образцы способны лишь приблизительно охарактеризовать исследуемый объект.

Существуют различные подходы к приготовлению стандартных образцов. Один из подходов состоит в выборе одного или нескольких образцов, которые были ранее проанализированы градуируемой системой активного НРА и/или с помощью независимых методов. Если в качестве независимого метода применяется химический анализ, то в ходе его выполнения образец будет разрушен, и невозможно будет его использовать для дальнейших измерений. Это является недостатком химического метода анализа. Избежать указанной проблемы можно, если дублировать набор образцов таким образом, чтобы отклики каждого из них в системе измерений были практически одинаковыми. Тогда один набор можно проанализировать разрушающим методом, а второй останется в качестве стандартного. Другой подход – изготавливать стандартные образцы, которые были бы очень близки по всем своим параметрам к измеряемым и содержали бы известное количество ядерного материала. Недостаток этого подхода заключается в том, что на практике добиться полного подобия

стандартных и измеряемых образцов можно только в отдельных случаях. Преимущество этого подхода заключается в том, что стандартные образцы можно измерять многократно.

Особенно трудным является изготовление стандартных образцов для анализа скрапа и отходов. Стандартные образцы для такого материала изготавливаются двумя различными способами. Один из способов заключается в помещении известного количества ядерного материала (ЯМ) на фиксированные позиции в контейнере вместе с материалами матрицы. Второй способ – «раскидать» ЯМ и материалы матрицы случайным образом. Если таким случайным образом изготавливаются большие количества стандартных образцов, средний отклик для стандартных образцов должен быть близок к отклику измеряемого образца.

Методика, которая иногда используется с целью компенсировать нехватку подходящих стандартных образцов, называется «добавить грамм». С помощью этой методики отклик детектора на образец определяется двукратным измерением образца. Первый раз он измеряется в чистом виде, второй раз – с добавлением известного количества ЯМ. Методика «добавить грамм» может использоваться только для тех образцов, в которые можно добавить дополнительное количество ЯМ таким образом, чтобы отклик на единицу массы ЯМ после добавления соответствовал отклику на единицу массы ЯМ неизмененного образца.

Градуировка измерительных систем должна осуществляться на стандартных образцах, содержащих количество ЯМ больше и меньше того количества, которое ожидается обнаружить в измеряемых объектах. Изотопный состав делимых материалов в стандартных образцах должен быть аналогичен составу измеряемых. В противном случае, необходимо знать эффекты влияния изменения состава. Градуировочный график вероятнее всего будет представлять собой прямую линию или будет описываться экспоненциальным уравнением вида (кривая с насыщением):

$$R = a(1 - e^{-bM}), \quad (4.3.30)$$

где  $R$  – отклик измерительной системы, откорректированный с учетом фона;  $M$  – масса ЯМ;  $a$  и  $b$  – константы.

Для определения значений констант обычно используется метод наименьших квадратов.

Значительную проблему в активном НРА представляет эффект самоослабления. Одним из подходов к решению этой проблемы является использование градуировочного графика, полученного с использованием нескольких стандартных образцов, каждый из которых содержит различное количество ЯМ. Другой подход заключается в определении степени самоэкранирования с помощью измерений самого образца с использованием «метода экстраполированной аликвоты». Эта методика предусматривает подготовку однородного диспергированного образца, который можно последовательно делить и разбавлять. Скорость счета от каждой аликвоты, деленная на массу исходного образца в аликвоте, строится в виде функции массы исходного образца в аликвоте. Пересечение, экстраполированное до нулевой массы, дает скорость счета на единицу массы исходного образца, откорректированную на эффекты самоэкранирования. Однако эта методика пригодна только для тех образцов, которые можно однородно разделить на меньшие части.

Градуировку системы необходимо проверять, как минимум, до и после измерения каждой группы образцов. Сколько времени должно проходить между этими двумя проверками, и необходимы ли дополнительные проверки во время проведения измерений группы образцов, устанавливается опытным путем. Переградуировка потребуется в случае, если градуировка вызывает подозрение, или образцы изменились таким образом, что старая градуировка больше не является действительной. Точные записи градуировки необходимы, чтобы отслеживать характеристики системы НРА или набора стандартных образцов за определенный период времени.

Источниками погрешностей для измерений с использованием активного НРА могут являться различия между измеряемым и стандартным образцом, фоновое излучение, нестабильность оборудования и статистика счета. Отличия между измеряемым и стандартным образцом могут заключаться в размерах, форме и местоположении контейнера с образцом, и положении ЯМ в пределах контейнера. В некоторых системах, таких как сканер топливных стержней, данный «геометрический» фактор легко проконтролировать, но в других системах, таких как те, что используются для анализа 200-литровых бочек с отходами, его

проконтролировать сложно. Геометрическую погрешность можно снизить вращением образца и вертикальным сканированием. Материал «матрицы» – неделящейся части измеряемого или стандартного образца, будут вызывать рассеяние, замедление или ослабление воздействующего излучения. Наиболее важными для нейтронов являются водородосодержащие материалы, потому что водород представляет собой отличный замедлитель нейтронов. Повышение количества ЯМ может привести к самоослаблению, и отклик измерительной системы станет представлять собой нелинейную функцию. Результатом увеличения количества ЯМ может также стать умножение. В этом случае отклик может увеличиваться. Присутствие воспроизводящих материалов может привести к тому, что число делений не будет соответствовать количеству ЯМ. Например, неизвестное изменение в соотношении  $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$  в системе, где делятся оба изотопа, и ни один из них не определяется по отдельности, приведет к погрешности результатов анализа. Различия стенок контейнеров для измеряемого и стандартного образца могут привести к различной степени рассеяния, замедления или ослабления, воздействующего и/или регистрируемого характеристического излучения. Все системы активного НРА имеют фоновое значение скорости счета, которое необходимо либо вычитать, либо учитывать. Свой вклад в фон вносят излучение от облучающего источника, излучение от образца, например, нейтроны реакций  $(\alpha, n)$  и спонтанного деления, а также естественный фон. В некоторых системах один или два из этих источников фона могут быть незначительными по сравнению с другими. На результаты может влиять нестабильность оборудования, но знание оборудования и достаточно частые проверки стабильности его работы могут свести погрешности, вызванные этим фактором, к минимуму. Погрешность в статистике счета можно снизить лишь за счет увеличения времени измерения, использования более интенсивного воздействующего излучения или более эффективной системы детектирования.

Системы активного НРА включают в себя все или часть ниже перечисленного оборудования:

- источник облучения с необходимой биологической защитой, системой коллимации и приборами контроля и управления;
- замедляющая и фильтрующая сборка для регулирования спектра нейтронов;
- измерительная камера (возможно, имеющая возможность вращения);
- система детектирования, включающая замедлители для увеличения эффективности регистрации характеристического излучения, а также фильтры и экраны для подавления регистрации нежелательного излучения;
- электронные схемы для питания детекторов, анализа энергий, обработки данных и проведения расчетов.

Источники облучения делятся на две основные группы: ускорители и изотопные источники. В некоторых случаях в качестве источника нейтронов может также использоваться ядерный реактор (см. раздел 4.3.5). Сборка для подгонки спектра обычно представляет собой композицию, состоящую из концентрических цилиндров из различных материалов, таких как свинец, вольфрам, углерод или полиэтилен, окружающих источник или мишень ускорителя. Используя различные комбинации материалов, добиваются различных спектров с разными значениями средней энергии и утечки нейтронов. Измерительные камеры, системы детектирования и электронные схемы активных и пассивных систем НРА могут быть идентичными или иметь различия, которые обычно не носят принципиального характера.

Существует большое число методик активного НРА. Описание всех их не входит в задачи данного курса. Поэтому в данном разделе дается лишь их краткое описание с указанием особенностей, имеющих практическое значение. Свойства методик обобщены в табл. 4.3.13, для содержания которой приняты следующие обозначения:  $n_z$  – запаздывающие нейтроны деления;  $n_m$  – мгновенные нейтроны деления;  $\gamma_m$  – мгновенные гамма-кванты деления;  $\gamma_z$  – запаздывающие гамма-кванты деления;  $n_m$  – детекторы тепловых нейтронов;  $n_b$  – детекторы быстрых нейтронов; C – органический сцинтиллятор; F – система анализа топливных стержней; L – большой образец; M – средний образец; S – маленький образец. Если с помощью измерительной системы возможно выполнение изотопного анализа, то стоит знак «+». Там, где имеется возможность различения изотопов, обычно подразумевается различие между

делящимся и воспроизводящим изотопами одного и того же элемента (например,  $^{235}\text{U}$  и  $^{238}\text{U}$ ). Указатель S обозначает маленький контейнер (пузырек, ампула объемом до  $15\text{ см}^3$ ), M – небольшой и средний контейнер (до 20 литров), L – большой контейнер (до 200–300 литров).

Из-за высокой интенсивности потока фотонов гамма-излучения при измерении облученного топлива, методики, основанные на использовании мгновенных и запаздывающих гамма-квантов, использоваться не могут. Для анализа такого материала используется только анализ нейтронов.

Таблица 4.3.13. Характеризация методов активного НРА ЯМ

Источник облучения, методика измерений	Основное измеряемое характеристическое излучение	Тип детектора	Возможность изотопного анализа	Размер /тип образца
Генератор нейтронов с энергией 14 МэВ; запаздывающие нейтроны	$n_z$	$n_m$	+	L
Генератор Ван-де-Граафа; запаздывающие нейтроны	$n_z$	$n_m$	+	L
$^{252}\text{Cf}$ ; пошаговое облучение; запаздывающие нейтроны	$n_z$	$n_m$	+	L*
Ядерные реакторы на тепловых нейтронах; запаздывающие нейтроны	$n_z$	$n_m$	+	S
Изотопный фотонейтронный источник; подпороговая энергия	$n_m$	$n_\sigma$	-	M
Фотонейтроны Sb-Be; возраст нейтронов по Ферми	$n_m$	$n_m$	-	M
Нейтроны $^{252}\text{Cf}$ ; замедление до подпороговой энергии	$n_m$	$n_\sigma$	+	F
Li ( $\alpha, n$ ) или $^{252}\text{Cf}$ ; быстрая система нейтронных совпадений	$n_m, \gamma_m, \gamma_z$	C	+	L
$^{241}\text{AmLi}(\alpha, n)$ ; активный колодезный счетчик нейтронных совпадений	$n_m$	$n_m$	-	M
$^{252}\text{Cf}$ ; сканер топливных стержней	$n_m, \gamma_z$	NaI, $n_\sigma$	-	F
$^{252}\text{Cf}$ ; система анализа небольших образцов	$\gamma_z$	NaI	+	S
Линейный ускоритель; фотоделение	$n_m, n_z$	$n_m$	+	L
Линейный ускоритель; фотонейтроны	$n_m$	$n_m$	+	L
Генератор нейтронов с энергией 14 МэВ; спектрометр со свинцовым замедлителем	$n_m$	$n_\sigma, n_m, C$	+	S

\*) – если источник  $^{252}\text{Cf}$  перемещается, можно анализировать образцы любого размера; если перемещается образец – только небольшие образцы.

Одним из специфических направлений активного НРА является использование методик измерений, основанных на регистрации запаздывающих нейтронов. При проектировании любой системы НРА необходимо учитывать потенциальное мешающее влияние излучения облучающего источника на регистрируемое характеристическое излучение. Поскольку нейтроны, высвобождающиеся в процессе распада продуктов деления, являются запаздывающими, то интерференцию со стороны воздействующего излучения можно исключить, используя их в качестве объекта измерения, при этом исключив или удалив от

измеряемого образца источник облучения. На практике применяются оба указанных метода. Если в качестве источника облучения применять ускоритель, то его нужно использовать в импульсном режиме. Если для облучения использовать изотопный источник, тогда либо источник, либо образец перемещают физически. В случае использования ядерного реактора, физически перемещен может быть только образец. Поскольку характеристики запаздывающего нейтронного излучения различны для каждого делимого изотопа, то с помощью пары или серии измерений можно выполнить изотопный анализ.

Высокоинтенсивные пучки воздействующих нейтронов с энергией 14 МэВ могут производиться с использованием относительно недорогих, небольших, низковольтных (обычно до 150 кВ) ускорителей Кокрофта-Уолтона путем бомбардировки содержащей тритий мишени ионами дейтерия: реакция  $T(d, n)^4He$ . Чтобы избежать влияния воздействующих нейтронов на процесс регистрации, генератор используется в импульсном режиме. В большинстве систем регистрации используется общий выход запаздывающих нейтронов. В некоторых случаях анализ проводится по временному распределению спада поля запаздывающих нейтронов. Метод используется для анализа делящихся и воспроизводящих изотопов и при определении степени обогащения. Практически с его помощью может быть измерен весь диапазон материалов – от топливных таблеток до отходов. Поскольку нейтроны с энергией 14 МэВ с легкостью проникают сквозь большинство материалов, включая водородосодержащие вещества, этот метод наиболее подходит для измерения контейнеров большого объема, включая 200-литровые бочки. Поскольку свинец является достаточно прозрачным для нейтронов с энергией 14 МэВ, данный метод также применим для измерения содержимого облученных топливных элементов в толстых свинцовых контейнерах для ядерного топлива.

Ускорители Ван-де-Граафа, используемые для анализа ЯМ, являются более универсальными, чем ускорители Кокрофта-Уолтона, но имеют большие размеры и стоимость. Преимущество этого типа ускорителя заключается в возможности генерировать нейтроны в любом из нескольких энергетических диапазонов, что позволяет избежать интерференции. Таким образом, можно, не прибегая к использованию системы подгонки спектра нейтронов по энергии, генерировать нейтроны с энергией выше или ниже определенной заданной величины, например, порога деления  $^{238}U$ . Ускоритель также должен использоваться в импульсном режиме. Единственная работающая система анализа на основе ускорителя Ван-де-Граафа находится в Лос-Аламосской национальной лаборатории и используется, в основном, для анализа небольших образцов, содержащих не более 10 г делящегося материала. Тем не менее, методика позволяет проводить анализы образцов всех размеров и материалов всех типов, например, U и Pu в твердой и жидкой форме, в отходах и скрапе.

В некоторых системах для анализа ЯМ по запаздывающим нейтронам в качестве источника воздействующего излучения используются изотопные источники нейтронов. Поскольку нейтронное излучение этих источников не может быть «отключено», для предотвращения интерференции между регистрируемым и воздействующим излучением необходимо после облучения отделять друг от друга источник нейтронов и исследуемый образец. Время прохождения образца или источника через установку должно составлять порядка секунды, чтобы не потерять большую часть сигнала запаздывающих нейтронов. Поэтому при необходимости перемещения образца, его размеры должны быть небольшими. Этот метод использовался для анализа плутония, делящихся и воспроизводящих изотопов урана в образцах, начиная с таблеток и заканчивая 200-литровыми бочками с отходами и скрапом. Применяя соответствующее экранирование детектора, можно анализировать высокоактивные, то есть содержащие продукты деления, образцы.

Для облучения в ядерном реакторе образцы кратковременно направляются в его активную зону с помощью пневмо- или гидро-почты. Размеры образца ограничиваются размерами транспортного канала. Преимуществом облучения в реакторе является большой поток нейтронного излучения в нем, и, как результат, большая интенсивность излучения запаздывающих нейтронов облученным образцом. Спектр нейтронного излучения в реакторе также может быть смоделирован в соответствии с потребностями анализа с использованием фильтров и материалов-конвертеров нейтронного потока. Большая интенсивность запаздывающих нейтронов образца делает возможным измерение его малых количеств. Поэтому ядерные реакторы активно использовались и используются в настоящее время для

исследования содержания урана и тория в геологических материалах. Например, при потоке нейтронов  $10^{13}$  нейтрон/(см<sup>2</sup>с) удастся добиться чувствительности анализов, составляющей  $3 \cdot 10^{-8}$  г. В обычной практике этот метод используется для определения микрограммовых количеств делящихся материалов в исследуемых образцах.

Необходимость конструирования систем активного НРА таким образом, чтобы воздействующее излучение не интерферировало с измеряемым характеристическим излучением, привела к использованию в качестве воздействующего излучения «подпороговых нейтронов». Подпороговые нейтроны – это нейтроны с энергией меньшей, чем энергия порога деления, составляющая для воспроизводящих изотопов приблизительно от 0,5 до 1,0 МэВ. Для сравнения, средняя энергия мгновенных нейтронов деления составляет примерно 1,6 МэВ. Если в качестве воздействующего излучения использовать подпороговые нейтроны, а детектирующая система способна дискриминировать эти нейтроны, тогда мгновенные нейтроны можно регистрировать в присутствии воздействующего излучения. Другое преимущество использования подпороговых нейтронов в качестве воздействующего излучения состоит в том, что при анализе делящихся изотопов, интерференция от воспроизводящих изотопов практически отсутствует или незначительна. По этой причине подпороговые нейтроны особенно эффективны при анализе топлива низкого обогащения. Если энергия воздействующих нейтронов составляет несколько кэВ, они будут проникать в образцы малых и средних размеров, а самоослабление в образце не будет представлять проблему (может не учитываться). Источники подпороговых нейтронов часто представляют собой изотопные источники  $^{124}\text{SbBe}(\gamma, n)$  и  $^{226}\text{RaBe}(\gamma, n)$ , а также  $^{252}\text{Cf}$  с подгонкой спектра. Если в наличии имеется ускоритель Ван-де-Граафа, для производства нейтронов с низкой энергией можно использовать реакции  $(n, p)$ .

Некоторые нейтронные детекторы имеют эффективный порог приблизительно 0,5 МэВ и поэтому нечувствительны к подпороговым нейтронам. Такими детекторами являются твердые и жидкие сцинтилляторы, которые имеют наивысшую эффективность для нейтронов деления среди всех детекторов быстрых нейтронов. Основным недостатком таких детекторов является высокая чувствительность к гамма-квантам. Определенная отсечка гамма-квантов может быть достигнута с помощью схемы дискриминации по форме импульса, которая использует разницу во времени затухания сцинтилляций от гамма-квантов и нейтронов. Относительно нечувствительным к гамма-излучению детектором является газонаполненный пропорциональный счетчик. Образование электрического сигнала в счетчиках, наполненных  $^4\text{He}$ , водородом и метаном, зависит от рассеяния нейтронов. Детектор с  $^4\text{He}$  имеет эффективный порог обнаружения нейтронов приблизительно 0,5 МэВ, в то время как детекторы с водородным и метановым наполнением могут регистрировать нейтроны с энергией от 10 кэВ до нескольких МэВ. Такие детекторы могут работать в присутствии гамма-полей примерно до 100 мР/ч. Камеры деления с воспроизводящим изотопом, таким как  $^{238}\text{U}$ ,  $^{232}\text{Th}$  или  $^{237}\text{Np}$  в качестве нейтронного конвертора, представляют собой детекторы быстрых нейтронов, которые могут работать в присутствии интенсивных гамма-полей. Недостатком камер деления является крайне низкая эффективность регистрации. Методика использования изотопных источников фотонейтронов (подпороговых нейтронов) используется для анализа отходов и скрапа в контейнерах объемом до 20 л.

Другой способ подсчета нейтронов деления в присутствии нейтронов источника Sb-Be заключается в использовании различия в их средних длинах свободного пробега (то есть среднего расстояния, которое проходит нейтрон между взаимодействиями). В воде нейтроны с энергией 24 кэВ имеют среднюю длину свободного пробега 0,54 см, а нейтроны с энергией 2 МэВ – 2,8 см. Когда характеристические нейтроны замедляются в воде до тепловой энергии, они будут диффундировать дальше, чем воздействующие нейтроны. Если в некоторой точке в воде испускается одинаковое количество воздействующих и характеристических нейтронов, то на определенном расстоянии от этой точки, например 12 см, соотношение замедленных воздействующих нейтронов и замедленных характеристических нейтронов будут намного меньше единицы. Поскольку при анализе образца будут регистрироваться и характеристические, и воздействующие нейтроны, необходимо из результата вычесть скорость счета фоновое воздействующее излучение. Наиболее близкое расстояние между образцом и источником, при котором может проводиться измерение, определяется соотношением сигнала к



фону. Название этой методики – «возраст Ферми» происходит от математической модели, описывающей потерю нейтронами энергии в непоглощающей или слабо поглощающей среде. Эта методика применяется для определения содержания делящегося материала в образцах небольших и средних размеров, таких как топливные элементы, топливные стержни, а также скрап и отходы в контейнерах объемом до 20 л. Она также применяется для измерения облученного топлива, загрязненного продуктами деления.

Недостатком использования  $^{124}\text{SbBe}$  источников в активном НРА является их короткий период полураспада и высокий уровень гамма-излучения. Другие подпороговые источники, такие как  $^{241}\text{AmLi}(\alpha, n)$ , имеют ограниченный выход нейтронов. Для некоторых областей применения эти недостатки можно устранить путем использования интенсивных малогабаритных источников нейтронов  $^{252}\text{Cf}$ . Однако, чтобы использовать  $^{252}\text{Cf}$  для анализа делящихся изотопов в присутствии воспроизводящих изотопов, энергетический спектр воздействующего излучения должен быть смягчен. При правильной подгонке спектр облучения может быть превращен практически в подпороговый, но все еще более жесткий, чем спектр фотонейтронных источников. Более жесткий спектр означает большую проникающую способность, при которой появляется возможность измерять большие образцы до того, как ослабление станет значительным. Дискриминация воздействующего излучения осуществляется с помощью пороговых детекторов, таких как пропорциональный счетчик  $^4\text{He}$  или камера деления. В качестве характеристического излучения используются мгновенные нейтроны деления. Эта методика применяется для анализа топливных стержней легководного реактора и высокотемпературных газоохлаждаемых реакторов. Изучалась возможность использования этой методики для измерений остаточного содержания делящегося материала в сборках отработавшего топлива. В общем случае, этот метод можно использовать для измерения ЯМ небольших и средних размеров, содержащихся в твердых веществах, таких как технологические материалы, а также в скрапе и отходах в контейнерах объемом от нескольких литров до нескольких сот литров.

Одним из наиболее действенных способов избежать в активном НРА интерференции сигналов от источника и объекта измерений является создание систем, детектирующих нейтроны совпадений. Описание этих систем приводится в разделе 4.8 данного курса.

Как уже отмечалось в разделе 4.3.2, измерение спектра нейтронов не имеет прямого отношения к анализу ядерных и радиоактивных материалов. Тем не менее, знание характеристик спектра является значимым, в частности, для развития методов анализа и новых детектирующих устройств. С другой стороны, точное определение функции  $\Phi(E)$ , описывающей распределение потока нейтронов по энергиям, является одной из труднейших задач экспериментальной ядерной физики. В настоящее время не существует ни одного универсального способа, позволяющего в любых энергетических интервалах и при любых условиях по измеренному распределению сигналов детектора найти функцию  $\Phi(E)$ . Однако существует множество методов, позволяющих решать эту задачу в ограниченных пределах. Поэтому в данном разделе рассматриваются методические основы некоторых из наиболее известных и распространенных методов анализа спектров нейтронов.

Грубая оценка энергетического спектра нейтронов может быть выполнена с помощью метода фильтров. Этот метод применяется как при работе с направленными потоками нейтронов, например с пучками нейтронов, выходящих из каналов ядерных реакторов или мишеней ускорителей, так и внутри реакторов, отражателей и в иных средах. Суть метода сводится к следующему. В измеряемом потоке нейтронов помещается детектор, эффективность которого  $\varepsilon$  зависит от энергии нейтронов по известному закону  $\varepsilon(E)$ . Число отсчетов такого детектора в 1 с будет составлять:

$$a_0 = S \int_0^{\infty} \varepsilon(E) \Phi(E) dE, \quad (4.3.31)$$

где  $S$  – площадь детектора.

Затем детектор окружается слоем вещества, для которого известна зависимость сечения поглощения нейтронов от их энергии  $\sigma_a(E)$ . Число отсчетов детектора при этом уменьшится и станет равным:

$$a = S \int_0^{\infty} \varepsilon(E) \Phi(E) e^{-n_0 \sigma_a(E)x} dE, \quad (4.3.32)$$

где  $x$  – толщина поглотителя;  $n_0$  – количество ядер в  $1 \text{ см}^3$ .

В случае произвольного вида функций  $\varepsilon(E)$  и  $\sigma_a(E)$  интерпретировать результаты такого опыта было бы весьма трудно. Однако специальным выбором вещества поглотителя и типа детектора можно получить весьма полезные результаты. Например, если

$$\sigma_a \rightarrow \infty \text{ при } E < E_0 \text{ и } \sigma_a = 0 \text{ при } E > E_0. \quad (4.3.33)$$

Веществ с такими свойствами в природе, конечно, нет. Однако у Cd, при  $E < 0,4$  эВ сечение поглощения очень велико, тогда как при больших энергиях оно на несколько порядков меньше. Поэтому при толщине кадмиевого фильтра 1–2 мм тепловые нейтроны практически полностью поглощаются, а поток нейтронов более высоких энергий почти не изменяется, в результате чего условие 4.3.33 можно считать выполненным. Тем самым можно принять, что

$$\exp(-n_0 \sigma_a x) = 0 \text{ при } E < E_0 \text{ и } \exp(-n_0 \sigma_a x) = 1 \text{ при } E > E_0. \quad (4.3.34)$$

Поэтому соотношение 4.3.32 примет вид:

$$a = S \int_0^{\infty} \varepsilon(E) \Phi(E) dE. \quad (4.3.35)$$

Если принять во внимание очевидное равенство:

$$a_0 = S \int_0^{E_0} \varepsilon(E) \Phi(E) dE + S \int_{E_0}^{\infty} \varepsilon(E) \Phi(E) dE, \quad (4.3.36)$$

то получится, что отношение измеряемых на опыте скоростей счета детектора без фильтра и с фильтром позволяет найти отношение эффектов, вызванных нейтронами с энергиями ниже  $E_0$  и выше  $E_0$ :

$$\frac{a_0}{a} = R = \frac{S \int_0^{E_0} \varepsilon(E) \Phi(E) dE}{S \int_{E_0}^{\infty} \varepsilon(E) \Phi(E) dE} + 1. \quad (4.3.37)$$

Величина  $R$  называется кадмиевым отношением. Очевидно, что величина  $R$  определяется не только соотношением потоков нейтронов с энергиями выше и ниже  $E_0$ , но также и типом применяемого детектора, от которого зависит вид функции  $\varepsilon(E)$ . Если в измерениях применяют «всеволновый» детектор, для которого  $\varepsilon = \text{const}$ , то кадмиевое отношение позволяет сразу получить отношение соответствующих потоков нейтронов:

$$R - 1 = \frac{\Phi(E < E_0)}{\Phi(E > E_0)}, \quad (4.3.38)$$

$$\text{где } \Phi(E < E_0) = \int_0^{E_0} \Phi(E) dE \text{ и } \Phi(E > E_0) = \int_{E_0}^{\infty} \Phi(E) dE. \quad (4.3.39)$$

Очень часто в подобных измерениях применяют детекторы, эффективность которых обратно пропорциональна скорости нейтронов. Характерным примером таких детекторов являются камеры и счетчики с  $^{10}\text{B}$  или  $^3\text{He}$ , а также фольги некоторых материалов со слабо выраженной резонансной структурой сечений. В частности фольги получили очень широкое

распространение, как инструмент исследования спектра нейтронов в ядерных реакторах. На их примере реализация данного метода может быть рассмотрена более подробно.

Наведенная активность в фольге в самом простом (постоянство потока нейтронов во время облучения, отсутствие ослабления нейтронного потока в фольге и другое) случае определяется как:

$$A(t) = \bar{\Phi} \sigma_{акт.} N_0 (1 - e^{-\lambda t_{обл.}}), \quad (4.3.40)$$

где  $\bar{\Phi}$  – флюенс нейтронов за время облучения;

$N_0$  – количество облучаемых ядер;

$\sigma_{акт.}$  – сечение активации материала фольги нейтронами;

$\lambda$  – постоянная распада образующегося в результате активации радиоизотопа;

$t_{обл.}$  – время облучения фольги.

Данное уравнение справедливо для моноэнергетического потока нейтронов. Реальный спектр тепловых нейтронов реактора охватывает широкую область энергий, следуя распределению Максвелла. Так как сечение  $\sigma_{акт.}$  реакции активации ( $n, \gamma$ ) также зависит от энергии нейтронов, то в уравнении активации произведение  $\Phi \sigma_{акт.}$  должно быть заменено интегралом:

$$\int_0^{\infty} \bar{\Phi}(E_n) \sigma_{акт.}(E_n) dE, \quad (4.3.41)$$

где  $\bar{\Phi}(E_n)$  – энергетическая зависимость плотности потока нейтронов;  $\sigma_{акт.}(E_n)$  – функция возбуждения реакции. Приводимые в справочниках сечения активации  $\sigma_{2200}$  соответствуют наиболее вероятной энергии нейтронов (при нормальной температуре 0,025 эВ, что соответствует скорости нейтронов 2200 м/сек). Может быть показано, что интеграл (4.3.41) для реакции, сечение которой следует закону  $1/v$ , равен произведению  $\bar{\Phi}_T \sigma_{2200}$ , в котором  $\bar{\Phi}_T = n_T t_{обл.}$ , где  $n_T$  – плотность потока тепловых нейтронов. Это означает, что по числу происходящих взаимодействий, поток нейтронов с распределением Максвелла равноценен моноэнергетическому потоку нейтронов с энергией 0,025 эВ, но с той же общей плотностью нейтронов. Для тех немногих ядер, у которых сечение активации не подчиняется закону  $1/v$ , интеграл (4.3.41) заменяется произведением  $\bar{\Phi}_T \sigma_{2200} g$ , где  $g$  – коэффициент, учитывающий степень этого отклонения.

На практике для определения степени активации материалов спектр нейтронов в ядерном реакторе представляют в виде трех компонент – тепловой  $\Phi_T(E)$ , промежуточной (надтепловой)  $\Phi_p(E)$  и быстрой:

$$\Phi(E) = \Phi_T(E) + \Phi_p(E) + \Phi_b(E). \quad (4.3.42)$$

В таком приближении отдельно определяется поток тепловых и резонансных нейтронов и отдельно быстрых. Для реакции, сечение которой следует закону  $1/v$  (для стационарного потока тепловых нейтронов), активность может быть определена с помощью выражения 4.3.40.

Для определения отношения  $\Phi_p/\Phi_T$  достаточно измерить кадмиевое отношение для какого-либо элемента (детектора) с известным  $\sigma_{2200}$  и резонансным интегралом ( $I_p$ ).

Кадмиевое отношение рассчитывают по активации небольшого количества элемента при облучении в фильтре из кадмия (толщиной 0,5–1 мм) и без него. Очевидно, что в отсутствие кадмия, активация элемента происходит при участии тепловых и резонансных нейтронов, а с фильтром – только при участии последних, так как фильтр из кадмия полностью поглощает все нейтроны с энергией менее 0,4 эВ.

На основании облучения и последующего измерения активности, кадмиевое отношение имеем вид:

$$R = \frac{A_T + A_p}{A_p} = \frac{\Phi_T \sigma_T + \Phi_p \sigma_p}{\Phi_p I_p}, \quad (4.3.43)$$

где  $A_T$  и  $A_p$  - активность радиоизотопа, обусловленная соответственно действием тепловых и резонансных нейтронов.

Согласно уравнению (4.3.43), кадмиевое отношение зависит от чувствительности детектора к тепловым  $\sigma_{2200}$  и резонансным  $I_p$  нейтронам и поэтому оказывается неодинаковым у разных детекторов.

Если кадмиевое отношение определено экспериментально, то при известных  $\sigma_{2200}$  и  $I_p$ , отношение плотностей потоков тепловых и резонансных нейтронов можно рассчитать по уравнению:

$$\frac{\Phi_T}{\Phi_p} = \frac{I_p}{\sigma_{2200}} (R - 1). \quad (4.3.44)$$

Метод активации фольг может быть использован для восстановления полного спектра нейтронов. Для анализа нейтронов в области резонансов используются индикаторные фольги из материалов, имеющих различные, отличающиеся по энергиям резонансные интегралы (метод резонансных индикаторов). Для определения плотности потока и энергетического спектра быстрых нейтронов применяют материалы, имеющие пороговые реакции захвата нейтронов с испусканием заряженных частиц и двух нейтронов  $(n, p)$ ,  $(n, 2n)$ ,  $(n, \alpha)$ , а также неупругого рассеяния нейтронов  $(n, n\gamma)$  и деления  $(n, f)$  (метод пороговых индикаторов). Энергетическая зависимость сечения пороговых реакций, используемых для определения характеристики поля быстрых нейтронов, подбирается по экспериментальным данным с учетом точности метода измерения. Анализ пороговых детекторов деления обычно выполняется с помощью трековых детекторов, описанных ранее в разделе 4.3.2. После облучения и измерений экранированных и неэкранированных резонансных и пороговых детекторов (фольг) проводится восстановление спектра нейтронов в надтепловой области. Для этого используются различные расчетные модели как теоретические, так и полуэмпирические: многогрупповой метод, метод Хартмана, метод эффективной пороговой энергии, метод Дитриха. Погрешность восстановления спектра зависит от точности определения скоростей реакций, точности используемых сечений и алгоритма метода решения.

Энергию нейтронов легко определить, если известна его скорость. По этому принципу был реализован метод спектрометрии нейтронов по времени пролета. Он является одним из методов прямого измерения энергии нейтронов, точнее, их скорости. Идея измерений проста – надо знать (установить) время выхода нейтрона на пролетную базу длиной  $L$  и время выхода из базы. Тогда, в нерелятивистском случае (малые энергии), время пролета подсчитывается по следующему соотношению:

$$t = \frac{L}{V} = \frac{L}{\sqrt{\frac{2E}{m_n}}}, \quad (4.3.45)$$

где  $V$  – скорость нейтрона;  $E$  – его энергия;  $m_n$  – масса нейтрона.

Если выражать энергию в единицах эВ, а скорость в м/с, то время пролета будет описываться уравнением:

$$t = 10^6 \frac{L}{V} = \frac{72,3L}{\sqrt{E}}. \quad (4.3.46)$$

Непосредственно в измерении находится распределение нейтронов по времени пролета  $f(t)$ , а нужно  $\Phi(E)$ .

Связь этих двух функций определяется выражением:

$$\Phi(E) = \frac{t}{m_n L^2} f(t) = 0,955 \cdot 10^{-4} t^3 f(t), \quad (4.3.47)$$

где  $E$  выражается в единицах эВ;  $L$  – м;  $t$  – мкс.

Энергетическое разрешение связано с разрешением по времени следующим соотношением:

$$\frac{\Delta E}{E} = \frac{2}{L} \sqrt{\frac{2E}{m_n}} \Delta t = \sqrt{E} \frac{\Delta t}{36L}, \quad (4.3.48)$$

где  $L$  измеряется в м,  $\Delta t$  в нс,  $E$  в МэВ.

На основании выражения 4.3.48 могут быть сделаны следующие выводы:

- одна и та же неопределённость во времени пролёта  $\Delta t$  даёт тем худшее разрешение по энергии, чем больше энергия нейтронов, то есть, очевидно, что этот метод хорош для медленных нейтронов;
- точность измерения тем выше, чем больше пролётное расстояние;
- точность определения  $\Delta t$  обусловлена:
  - а) конечной длительностью импульса нейтронов;
  - б) конечной шириной начала амплитудного анализатора;
  - в) разбросом (временным) детектора;
  - г) разбросом стартовых импульсов на время-амплитудном канале;
  - д) разрешающим временем регистрирующей электроники.

Ограничения на длину пролёта накладывает ослабление потока нейтронов в воздухе и то обстоятельство, что быстрые нейтроны от следующего импульса могут обогнать медленные нейтроны (рециклические) от предыдущего импульса.

Время попадания нейтрона в конечную точку определяется сигналом с детектора. Наилучшим разрешением во времени обладают сцинтилляционные счётчики, они и используются чаще всего. Лучшее разрешение получают  $\sim 1$  нс.

Время вылета нейтрона из начальной точки может быть задано несколькими способами:

- применением импульсного источника нейтронов,  $\tau$  имп.  $\approx$  ед.нс;
- регистрацией излучения, сопутствующего образованию нейтронов в ядерной реакции, для этого вблизи мишени ставится счётчик фотонов гамма-излучения;
- с помощью устройства, прерывающего пучок нейтронов, так называемого механического селектора нейтронов.

Короткие импульсы нейтронов создаются путём прерывания непрерывного потока нейтронов с помощью быстро вращающегося ротора, снабженного системой щелей (рис. 4.3.26).

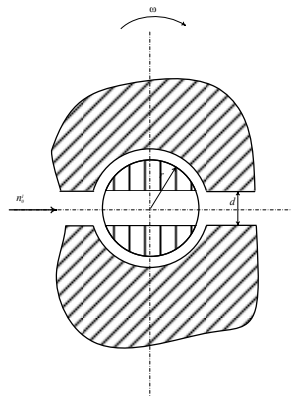


Рис. 4.3.26. Схематичное изображение щели ротора для пропускания нейтронов.

В момент совпадения плоскости щели (или щелей – если их несколько) с направлением пучка нейтронов, они проходят через ротор в течение коротких отрезков времени. Пропускание

роторм нейтронов зависит от их собственной скорости, ширины щели, её длины и угловой скорости ротора.

Для определения спектра нейтронов могут быть использованы их волновые свойства. На этом принципе основана работа нейтронных кристаллических спектрометров (дифрактометров). Коллимированный пучок нейтронов направляется на монокристалл. Если длина волны удовлетворяет условию Вульфа-Брегга, то в этом случае наблюдается дифракция нейтронов в кристалле:

$$n\lambda = 2d \sin \theta,$$

Где  $\lambda = \frac{0,286}{\sqrt{E}}$ ; где  $\lambda$  – длина волны в ангстремах,  $E$  – энергия нейтронов в эВ;  $d$  –

межплоскостное расстояние в монокристалле,  $\theta$  – угол между направлением пучка излучения и плоскостями кристаллической решетки,  $n$  – произвольное целое число.

Под углом  $\theta$  наблюдается отражение нейтронов с заданной длиной волны  $\lambda$  (то есть энергии  $E$ ). Нейтроны с другими скоростями такого отражения не испытывают и переходят в кристалл в другом направлении.

Кристаллический спектрометр – монохроматор по своей сути. Из сплошного спектра выделяют за счёт отражения нейтроны с определённой длиной волны. Обычно такие спектрометры применяются для исследований нейтронов тепловых энергий или энергий, близких к ним. Например, для часто используемого кристалла LiF  $d=2,32$  ангстрем (в плоскости (111));  $E=1$  эВ,  $\theta=3,5^\circ$  (малый, но реализуемый угол). Для  $E=100$  эВ,  $\theta=0,35^\circ$  (этот угол уже порядка углового разрешения, которое можно получить в монохроматоре и общее разрешение будет уже плохим  $\sim \frac{\Delta\lambda}{\lambda} \approx 50\%$ ). Интенсивность отражения падает с ростом энергии нейтронов по закону  $1/E$ .

В реальной установке детектор может быть повернут вокруг кристалла, чем можно задавать нужный угол  $\theta$ , а, следовательно,  $E$ . Диапазон измеряемых энергий 0,02–50 эВ.

При упругом рассеянии нейтронов возникают ядра отдачи, энергия которых однозначно связана с начальной энергией нейтрона, углом между траекториями движения нейтрона до рассеяния и ядра отдачи и массовым числом ядра отдачи (см. раздел 4.3.1). Поэтому измерение энергии ядер отдачи любым методом, используемым при спектрометрии заряженных частиц, позволяет определять энергию нейтронов. Этот метод получил названия метода ядер отдачи. Наиболее целесообразно использовать в качестве материала рассеяния водородосодержащие материалы. Регистрация ядер отдачи обычно ведется в небольшой телесный угол, определяемый рабочей поверхностью детектора. Детектор, также как и в дифракционном методе может менять свое положения для регистрации рассеянных по различным углам ядер. Для детектирования нейтронов часто используются ионизационные камеры с коллиматором ядер отдачи или датчики с электронной коллимацией.

#### **NS4.3.5. Нейтронные источники, импульсные нейтронные источники**

Свободные нейтроны нестабильны, они распадаются, превращаясь в протоны, электроны и антинейтрино. Среднее время жизни нейтрона  $\approx 10^3$  с. Они могут быть получены в различных реакциях на ядрах, в которых нейтроны наиболее слабо связаны.

Достаточно интенсивные потоки нейтронов можно получить:

- в результате ядерных реакций  $(\alpha, n)$ ,  $(\gamma, n)$ ,  $(p, n)$ ,  $(d, n)$ ;
- при делении тяжелых ядер.

Радиоизотопные источники преимущественно основаны на ядерных реакциях типа  $(\alpha, n)$  и  $(\gamma, n)$ . В ускорительных комплексах чаще других для получения нейтронов используются ускоренные протоны и дейтроны. Наиболее интенсивные потоки нейтронов возникают в ядерных реакторах, где нейтроны освобождаются в ходе цепной реакции, основанной на процессе вынужденного деления тяжелых ядер.

К нейтронным источникам обычно предъявляются следующие требования: стабильность плотности потока, стабильность энергетического спектра, стабильность пространственного распределения, невысокий уровень сопровождающего жесткого гамма-излучения, возможность транспортировки, безопасность использования и другие.

Область применения нейтронных источников для целей контроля и анализа за ядерными материалами ограничивается в основном их использованием:

- в методиках активного анализа ЯМ;
- для определения малых (следовых) количеств материалов в технологических (например, в урановой геологии) и других целях (например, в ядерных криминалистических расследованиях);
- для контроля технологических процессов;
- для контроля загрязнения и отложений материалов в технологических трактах.

Кроме того, нейтронный активационный анализ используется для анализа элементного состава технологических сред, а также в качестве высокочувствительного метода анализа изотопного и элементного состава при криминалистических расследованиях.

#### **Радиоизотопные нейтронные источники**

Радиоизотопные источники являются наиболее доступными. Обычно их плотность потока достигает  $10^5$  н/(см<sup>2</sup> с). Энергетические спектры источников нейтронов сплошные в диапазоне 4–6 МэВ. Основное количество нейтронов имеет энергию в диапазоне 1–8 МэВ.

Состав вещества ( $\alpha, n$ )-источника нейтронов представляет собой однородную смесь излучателя альфа-частиц с веществом мишени, из ядер которого испускаются нейтроны. Известно достаточно большое число комбинаций  $\alpha$ -излучатель – мишень, которые могут быть использованы в качестве источника нейтронов. Характеристики наиболее распространенных источников нейтронов на основе реакций ( $\alpha, n$ ) обобщены в табл. 4.3.14.

Таблица 4.3.14. Характеристики ( $\alpha, n$ )-источников нейтронов

Радио- нуклид	Период Полураспада	Энергия $\alpha$ -частиц, МэВ	Мишень	Энергия нейтронов, МэВ		Поток нейтронов, 10 <sup>6</sup> , с <sup>-1</sup>
				средняя	макси- мальная	
<sup>210</sup> Pb	22 года	3,72; 5,305	Be	4,5 - 5	10,87	2,3 – 2,5
<sup>210</sup> Po	138,4 дней	5,305	Li	0,48	1,3 – 2,6	0,05 – 0,4
			Be	4,2 – 5,3	10,87	2,3 – 3,0
			B	3,0	6,4	0,5 – 0,81
			<sup>18</sup> O	2,3	4,3	1,1
			F	1,4	2,6	0,15 – 0,44
<sup>222</sup> Rn	3,82 дней	5,49	Be	4,7	13,08	14,0 – 15,0
<sup>226</sup> Ra	1620 лет	4,78; 4,6	Be	3,9 – 4,7	13,08	10,0 – 17,1
			BeF <sub>4</sub>	4,7	13,08	1,95 – 3,0
			B			7,0
<sup>227</sup> Ac	21,8 года	4,9	Be	4,0 – 4,7	12,79	15 – 26
<sup>228</sup> Th	1,91 года	5,43; 5,34	Be			17,0 – 20,0
<sup>238</sup> U	72 года	5,32; 5,27	Be		22,0	9
<sup>238</sup> Pu	86,4 года	5,50; 5,46	Be	5,0	11,3	2,2 – 4,0
<sup>239</sup> Pu	24390 года	5,16; 5,11	Be	4,5 – 5,0	10,74	1,5 – 2,2
<sup>241</sup> Am	458 лет	5,49; 5,44	Li	0,4		0,04
			Be	5,0	11,5	2,2 – 2,7
			B	3,0	0,5 – 0,7	0,5
			F	1,5	0,15	0,15
<sup>242</sup> Cm	162,5 дня	6,12; 6,07	Be	4,0	11,5	3,0 – 7,0
			B	3,0		0,84
			C		8,0	0,01
<sup>244</sup> Cm	17,6 года	5,81; 5,77	Be	5,8	11,2	2,5 – 6,0

Наиболее широкое применение для генерации нейтронов получила реакция  ${}^9\text{Be}+{}^4\text{He}\rightarrow {}^{12}\text{C}+n$  из-за большого энергетического выхода ( $Q=5,71$  МэВ), малого заряда ядра мишени и значительного сечения взаимодействия. В качестве изотопного источника излучения выгодно использовать  ${}^{210}\text{Po}$ , имеющий небольшой период полураспада (138 дней), а значит большой выход  $\alpha$ -частиц в единицу времени. Кроме того, этот элемент обладает малым выходом фотонов гамма-излучения. Мощность Po-Be источника нейтронов достигает  $5\cdot 10^8$  нейтронов в секунду. Малый период полураспада является преимуществом и недостатком одновременно. Недостаток заключается в небольшой продолжительности срока эксплуатации источника. Кроме Po-Be выпускаются источники на основе  ${}^{239}\text{Pu}$ , главным достоинством которого является большой период полураспада радиоизотопа, равный 24390 лет. Применяются и другие трансплутониевые элементы. Кроме Be для получения нейтронов применяют и другие лёгкие элементы, например В или Li.

Одной из наиболее важных характеристик при практическом применении изотопных источников является период полураспада тяжелого элемента, испускающего альфа-частицы. Источники, перечисленные в табл. 4.3.14, 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 большой 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  ${}^{241}\text{AmLi}$ . 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. Источники AmLi обычно изготавливаются путем смешивания  ${}^{241}\text{AmO}_2$  с оксидом лития. Реакции ( $\alpha,n$ ) 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 дают вклад в скорость счета совпадений. Источники  ${}^{241}\text{AmLi}$  менее компактны, стоят дороже и требуют вольфрамовой защиты. 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 ( $\alpha,n$ ) испускают также гамма- и бета-излучение, и во многих случаях доза, наблюдаемая за пределами контейнера, определяется фотонами гамма-излучения (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 ( $\alpha,n$ ) относительно его полного радиационного выхода в кюри. Из-за высокого выхода фотонов гамма-излучения некоторые источники на основе реакции ( $\alpha,n$ ) 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.

Подготовка материала ( $\alpha,n$ )-источников нейтронного излучения заключается в механическом перемешивании соединений альфа-излучателя и материала мишени. Перемешивание осуществляется «сухим» или «мокрым» способом. «Сухой» способ использует порошки, «мокрый» – порошки и растворы. Для уменьшения объема вещества источника из смеси при высокой температуре и больших давлениях прессуют таблетки. При этом все химические соединения переходят в оксиды.



В настоящее время значительную часть  $(\alpha, n)$ -источников изготавливают с использованием технологий получения интерметаллида MeBe в металлической бериллиевой матрице. Это устойчивое соединение обеспечивает высокий и стабильный выход нейтронов.

Конструктивно  $(\alpha, n)$ -источники просты: радиоактивный материал помещается в две вставленные одна в другую капсулы цилиндрической формы. Иногда в конструкции используется медная пластина, которая обеспечивает теплоотвод при герметизации сваркой и эксплуатации источников, использующих легкоплавкие компоненты. Источники специального назначения отличаются более сложной конструкцией капсулы.

*Фотонейтронные  $(\gamma, n)$  – источники* используются реже. Причиной является малое сечение  $(\gamma, n)$ -реакций и их эндотермичность. Для фотонейтронных источников необходимы фотоны  $\gamma$ -излучения с энергией, превышающей энергию связи нейтронов в ядрах мишени. Наименьшей энергией связи нейтронов среди стабильных ядер обладают  ${}^9\text{Be}$  (1,67 МэВ) и  ${}^2\text{H}$  (2,23 МэВ).

В отличие от  $(\alpha, n)$ -источников, испускающих нейтроны с непрерывным спектром, фотонейтронные источники, использующие монохроматические фотоны, излучают почти моноэнергетические нейтроны. Недостатками  $(\gamma, n)$ -источников являются малый выход и небольшое время жизни излучателей. Значительным недостатком является большой  $\gamma$ -фон. Даже в лучшем случае число гамма-квантов, выходящих из источника, больше чем в  $10^3$  раз превышает число нейтронов.

*Источники нейтронов на основе  ${}^{252}\text{Cf}$ .* 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. Нарботка в достаточных количествах спонтанно делящихся трансурановых элементов позволяет изготавливать источники нейтронов с известной активностью. Такие источники могут быть изготовлены с использованием других изотопов, излучающих нейтроны в результате спонтанного деления или реакции  $(\alpha, n)$  между мощными альфа-излучающими изотопами и веществами, состоящими из элементов с низким атомным номером.

${}^{252}\text{Cf}$  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. 4.3.15 приведены некоторые свойства  ${}^{252}\text{Cf}$ . Наиболее удобен изотоп  ${}^{252}\text{Cf}$ , период  $\alpha$ -распада которого составляет 2,55 года. Нейтронная активность данного изотопа равна  $2,5 \cdot 10^6$  н./с·мкг, что позволяет создавать практически точечные источники. Абсолютную нейтронную активность можно определить с достаточной точностью, подсчитав количество делений. Спектр нейтронов соответствует классическому спектру деления. На каждый акт спонтанного деления приходится в среднем 3,757 мгновенных нейтронов, 31 альфа-частица и около 10 фотонов гамма-излучения. Изготавливаются источники с выходом до  $10^{10}$  н./с.

Для изготовления радиоактивного материала на основе  ${}^{252}\text{Cf}$  были разработаны различные технологии: синтез малорастворимых соединений, пропитка пористых материалов, сорбция, электрохимическое осаждение, изготовление керметов. Синтез малорастворимых соединений ориентирован на изготовление источников «точечной геометрии». Сорбционный способ часто применяют для изготовления активной части источников. Метод пропитки пористых материалов прост в исполнении, не требует сложного оборудования и может быть легко реализован дистанционно. Метод электрохимического осаждения позволяет обеспечить точность дозировки и разнообразие геометрических размеров, использовать простое оборудование и дистанционное проведение процесса. Основным методом изготовления активной части протяженных источников нейтронов является керметная технология. Суть технологии заключается в равномерном диспергировании оксида радионуклида в металлической матрице. Выщелачиваемость калифорния из керметной проволоки менее 0,001 %.

Таблица 4.3.15. Характеристики  $^{252}\text{Cf}$

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	$1,3 \times 10^{13}$ $\gamma$ /с·г
Выход альфа-частиц	$1,9 \times 10^{13}$ $\alpha$ /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 Ки/Г
Средняя множественность нейтронов спонтанного деления	3,757
Средняя множественность гамма-квантов спонтанного деления	8

Большинство радиоизотопных источников испускают нейтроны быстрого или промежуточного энергетического диапазона. Для получения тепловых нейтронов источники помещают внутрь какого-либо замедлителя. В качестве замедлителя обычно используют парафин, реже другие замедлители и очень редко  $\text{H}_2\text{O}$ . Недостатком источников с замедлителем является малая плотность потока нейтронов. Она на 2–3 порядка меньше плотности потока чистого источника. Для поглощения тепловых нейтронов обычно используются кадмиевые экраны.

#### **Генерация нейтронов с помощью ускорителей**

Ускорители как нейтронные генераторы имеют преимущества перед радиоизотопными источниками. Максимальная интенсивность при их использовании может быть на несколько порядков больше. Кроме того, с помощью ускорителей могут быть получены моноэнергетические нейтроны практически с любой энергией и с хорошим энергетическим разрешением. В качестве источников нейтронов используются различные типы электронных и ионных ускорителей.

Появление нейтронов при облучении мишени пучком быстрых электронов возможно в результате двухэтапного процесса: образования тормозного  $\gamma$ -излучения и последующей генерации нейтронов в  $(\gamma, n)$  – реакции. Современные ускорители электронов позволяют создать достаточно мощные источники нейтронов. В качестве мишени обычно используют тяжёлый металл: уран, вольфрам или свинец. Поток нейтронов из мишени, в которой образуются и фотоны, и нейтроны, зависит от материала мишени, её толщины, энергии электронов и интенсивности электронного пучка. Для электронов с энергией 30 МэВ выход из толстой урановой мишени приблизительно равен  $10^{11}$  н/(см<sup>2</sup>·мкА). Энергия нейтронов зависит от энергии возбуждения ядра. При значительных толщинах мишени спектр нейтронов сдвигается в область малых энергий вследствие вероятности неупругих столкновений.

Нейтроны с определенной вероятностью возникают в любых мишенях, которые облучаются тяжёлыми заряженными частицами. При энергии ускоренных частиц, не превышающих 30 МэВ, самый большой выход можно получить, облучая мишени из лёгких ядер, обычно Li или Be. Таким способом получают интенсивные пучки нейтронов на циклотронах. Например, при энергии дейтрона 24 МэВ полный выход нейтронов, вылетающих под всеми углами из бериллиевой мишени, составляет около  $2 \cdot 10^{11}$  н/(см<sup>2</sup>·мкА). Обычно используют мишени, толщина которых сравнима с длиной свободного пробега заряженной частицы в материале мишени. В мишени с определенной вероятностью может происходить несколько реакций:  $(d, n)$ -,  $(d, 2n)$ -,  $(d, pn)$ - реакции. Кроме того, ядро, как правило, остаётся в возбуждённом состоянии. Эти обстоятельства приводят к формированию непрерывного спектра нейтронов. Дополнительным фактором является зависимость спектра нейтронов от

угла вылета нейтронов из мишени. Угловое распределение нейтронов резко анизотропно с максимумом в направлении движения дейтрона.

Протоны и альфа-частицы, ускоренные на циклотроне используются для генерации нейтронов с энергией в интервале 0,8–2 МэВ. С увеличением энергии протонов выход нейтронов резко возрастает. И хотя токи ускоренных протонов на синхроциклотронах примерно на три порядка меньше, чем токи циклотронов, их нейтронные выходы сравнимы, вследствие высокой энергии протонов, которая достигает 500–600 МэВ. В спектре нейтронов достаточно четко представлены каскадные нейтроны, которые последовательно выбиваются из ядер протонами высокой энергии, и нейтроны, испускаемые возбужденными ядрами.

Для получения моноэнергетических нейтронов используются  $(p, n)$  – и  $(d, n)$  – реакции на лёгких ядрах. Необходимое условие генерации нейтронов узкого энергетического интервала заключается в обеспечении малого разброса по энергии пучка заряженных частиц. Поэтому широкое применение в качестве источников заряженных частиц для получения моноэнергетических нейтронов нашли электростатические ускорители типа ускорителей Ван-де-Граафа.

### ***Генерация нейтронов в ядерных реакторах***

Ядерные реакторы являются наиболее мощными источниками нейтронов. Интегральный выход нейтронов достигает величины  $10^{17}$ – $10^{18}$  н./с, что на много порядков превышает мощность любого нейтронного источника. В активной зоне реактора плотность потока нейтронов может достигать нескольких единиц на  $10^{15}$  н./см<sup>2</sup>·с. Большие плотности потока нейтронов были достигнуты только при ядерных взрывах. Огромные потоки нейтронов в активной зоне позволяют создавать коллимированные пучки нейтронов с интенсивностью до  $10^{10}$  н./с. Энергетический интервал реакторных нейтронов очень широк: от холодных нейтронов с энергией до  $10^{-3}$  эВ до быстрых нейтронов с энергией до 18 МэВ. Энергетический спектр нейтронов деления близок к Максвелловскому распределению. Функция, описывающая это распределение, имеет максимум в области с энергией около 0,7 МэВ. Средняя энергия нейтронов деления близка к 2 МэВ. Однако спектр нейтронов в активной зоне, замедлителе и отражателе отличается от спектра нейтронов деления. Причиной этого является потеря энергии в многочисленных столкновениях с ядрами. Степень деформации спектра деления зависит от материала и конструкций элементов реактора. Для реактора на быстрых нейтронах деформация существенно меньше, чем для реактора на тепловых нейтронах.

Для увеличения числа тепловых нейтронов используют так называемые тепловые колонны, которые представляют собой большие блоки материала с малым сечением поглощения и хорошими замедляющими свойствами. Нагревая или охлаждая замедлитель, можно изменять спектр нейтронов. Использование фильтров из различных элементов с избирательным по энергии поглощением нейтронов позволяет целенаправленно формировать спектр нейтронов.

### ***Импульсные источники нейтронов (ИИН)***

Импульсные источники нейтронов – это установки для генерации нейтронов, обеспечивающие получение контролируемых и повторяемых импульсов нейтронных потоков. Как правило, нейтронные импульсы имеют длительность порядка  $10^{-9}$ – $10^0$  с.

По способу генерации нейтронных импульсов ИИН можно условно разделить на два класса:

- импульсные реакторы и реакторы непрерывного действия с прерывателями;
- импульсные источники нейтронов на базе ускорителей заряженных частиц.

К первому классу относятся:

- аperiodические импульсные реакторы самогасящего действия (ИРСД), в которых импульс нейтронов инициируется быстрым введением избыточной реактивности, а гашение вспышки осуществляется, благодаря отрицательной мощностной обратной связи. ИРСД работают в режиме мощных однократных импульсов и характеризуются длительностью импульса от десятков микросекунд до нескольких секунд;

- импульсные реакторы периодического действия (ИРПД), в которых импульсы нейтронов формируются внешним периодическим изменением реактивности (модуляцией реактивности). Частота импульсов 1–100 Гц, длительность импульсов – от десятков до сотен микросекунд;
- реакторы непрерывного действия с механическими прерывателями на выведенных пучках нейтронов.

Ко второму классу относятся:

- неразмножающие мишени ускорителей заряженных частиц, в которых импульсы нейтронов генерируются посредством конверсии на материале мишени высокоэнергетических заряженных частиц в нейтроны, частота и длительность импульсов совпадает с частотой и длительностью посылок ускорителем пучка заряженных частиц на мишень и составляют соответственно 1–100 Гц и  $10^{-9}$ – $10^{-5}$  с;
- бустеры – размножающие мишени ускорителей заряженных частиц, в которых импульсы нейтронов конверсии усиливаются путем размножения нейтронов вследствие реакции деления; частота следования импульсов 1–100 Гц, длительность импульсов  $10^{-7}$ – $10^{-4}$  с;
- нейтронные генераторы – установки для генерации нейтронных импульсов в реакциях термоядерного синтеза легких ядер с длительностью импульсов  $10^{-9}$ – $10^{-6}$  с.

Достаточно условно импульсными источниками нейтронов могут считаться мирные взрывы ядерных и термоядерных устройств. Ядерный взрыв, как источник нейтронов, можно рассматривать как верхний теоретический предел интенсивности ИРСД. При взрыве на базе цепной реакции деления с эквивалентной мощностью  $10^6$  кг взрывчатого вещества образуется примерно  $2 \cdot 10^{23}$  нейтронов, а при взрыве термоядерного устройства такой же мощности нейтронов генерируется в 5–10 раз больше.

Различные типы ИИН отличаются друг от друга мощностью, флюенсом за импульс, экспериментальным объемом, импульсной плотностью потока нейтронов, длительностью и частотой импульсов, спектром нейтронов, уровнем фонового излучения, условиями эксплуатации и другими параметрами.

#### *Самогасящиеся импульсные реакторы*

Работа ИРСД рассчитана на генерирование мощных одиночных импульсов и основана на принципе самогашения избыточной реактивности. Инициирование вспышки мощности осуществляется быстрым выведением из реактора группы поглощающих стержней, либо введением в него блока из делящегося материала, что увеличивает реактивность и переводит реактор в надкритическое состояние по мгновенным нейтронам. Быстрый рост мощности вызывает разогрев активной зоны, изменение ее состава и размеров, изменение ядерных сечений, что в итоге приводит к снижению реактивности и мощности реактора. В момент достижения максимальной мощности введенная перед импульсом реактивность ( $\rho$ ) полностью компенсируется разогревом реактора. По окончании вспышки в реакторе устанавливается отрицательная реактивность, по абсолютному значению равная исходной. Полная энергия вспышки не зависит от начальной мощности реактора и ограничена допустимым разогревом топлива и его теплоемкостью.

В ИРСД основным механизмом гашения импульса мощности являются внутренние свойства реактора, его обратные связи. Внешние устройства воздействия на реактивность служат преимущественно лишь для быстрого перевода реактора в надкритическое состояние перед генерацией импульса и для обрыва медленно спадающего хвоста импульса, обусловленного запаздывающими нейтронами.

Основными показателями качества ИРСД являются флюенс нейтронов за импульс, длительность импульса и объем пространства с высоким флюенсом, доступного для проведения экспериментов по облучению. В табл. 4.3.16 приведены характеристики некоторых ИРСД.

По спектру нейтронов ИРСД делят на тепловые и быстрые. К тепловым относятся реакторы с водяным замедлителем (в том числе и растворные), с графитовым замедлителем и бассейновые, типа TRIGA с топливом в виде тройного сплава уран - цирконий - водород.

В гомогенных растворных реакторах топливом является водный раствор уранилсульфата. Режим самогасящейся вспышки в таких реакторах обеспечивается наличием двух компонентов отрицательной обратной связи, из которых первая определяется разогревом активной зоны, а вторая – пустотным эффектом реактивности, обусловленным образованием радиолитического газа, успевающего за время импульса покинуть топливный раствор. Форма и энергия импульса нейтронов зависят от параметров активной зоны и значения вводимой «скачком» реактивности. Импульсными реакторами растворного типа являются реакторы ИИН (РНЦ Курчатовский институт, г. Москва).

Табл. 4.3.16. Характеристики импульсных реакторов самогасящего действия

Реактор (страна)	Топливо (обогащение урана, %)	Число делений в максимальном импульсе	Полуширина импульса, с	Флюенс нейтронов за импульс в экспериментальном канале, см <sup>-2</sup>
ИИН (Россия)	Раствор сульфата урана (90)	$5 \cdot 10^{17}$	$2 \cdot 10^{-3}$	$2,5 \cdot 10^{15}$
ВИР-2М (Россия)	Раствор сульфата урана (90)	$2,5 \cdot 10^{18}$	$2,65 \cdot 10^{-3}$	$8,5 \cdot 10^{14}$
ИГРИК (Россия)	Раствор сульфата урана (90)	$2 \cdot 10^{18}$	$2,4 \cdot 10^{-3}$	$1,5 \cdot 10^{15}$
ЯГУАР (Россия)	Раствор сульфата урана (90)	$1,8 \cdot 10^{18}$	$7,5 \cdot 10^{-4}$	$7 \cdot 10^{14}$
SILENE (Франция)	Раствор сульфата урана (93,5)	$1,4 \cdot 10^{17}$	-	$1,5 \cdot 10^{14}$
TREAT (США)	U <sub>3</sub> O <sub>8</sub> + C (93,5)	$3 \cdot 10^{19}$	$1,15 \cdot 10^{-1}$	$7 \cdot 10^{15}$
АСРР (США)	U + ZrH (20)	-	$4,7 \cdot 10^{-3}$	$3,6 \cdot 10^{15}$
TRIGA-АСРР (Япония)	U + ZrH (93,5)	$3,7 \cdot 10^{18}$	$4,4 \cdot 10^{-3}$	$1,5 \cdot 10^{15}$
ИГР (Казахстан)	UC + C (90)	$1,7 \cdot 10^{20}$	$10^{-1}$	$3,7 \cdot 10^{16}$
БИГР (Россия)	UO <sub>2</sub> + C	$8,7 \cdot 10^{18}$	$2 \cdot 10^{-3}$	$1,2 \cdot 10^{16}$
GODIVA (США)	U + 1,5% Мо (93,5)	$8,3 \cdot 10^{16}$	$2,4 \cdot 10^{-5}$	$10^{15}$
SUPER-KUKLA (США)	U + 10% Мо (20)	$3 \cdot 10^{18}$	$6 \cdot 10^{-4}$	$1,5 \cdot 10^{15}$
FRAN (США)	U (93,5)	$5 \cdot 10^{16}$	$4 \cdot 10^{-5}$	-
VIPER (Великобритания)	U + 1,25% Мо (37,5)	$3,6 \cdot 10^{17}$	$4 \cdot 10^{-4}$	$10^{15}$
CALIBAN (Франция)	U + 10% Мо (93,5)	$6 \cdot 10^{16}$	$5 \cdot 10^{-5}$	$3 \cdot 10^{14}$
SPR-II (США)	U + 10% Мо (93,5)	$1,6 \cdot 10^{17}$	$3,2 \cdot 10^{-5}$	$10^{15}$
БИР-2М (Россия)	U + 6 % Мо (85)	$10^{17}$	$5,5 \cdot 10^{-5}$	$5 \cdot 10^{14}$
БР-1 (Россия)	U + 9 % Мо (90)	$3,4 \cdot 10^{17}$	$5,3 \cdot 10^{-5}$	$10^{15}$
ТИБР (Россия)	U + 9 % Мо (90), ZrH <sub>1,9</sub>	$2,2 \cdot 10^{17}$	$4,8 \cdot 10^{-4}$	$10^{15}$
БАРС-5 (Россия)	U + 9 % Мо (90)	$5 \cdot 10^{17}$	$4 \cdot 10^{-5}$	$10^{15}$

Максимальное энерговыделение и максимальный флюенс нейтронов в импульсе характерны для ИРСД с графитовым замедлителем, благодаря большой теплоемкости и стойкости топлива к высокому подогреву и тепловому удару. К таким реакторам относится реактор ИГР, являющийся до сих пор самым мощным в мире. Он был построен в Семипалатинске в 1961 г., модернизирован в 1967 г. и предназначен для изучения динамики быстропротекающих процессов в активных зонах реакторов различных типов. Геометрически активная зона ИГР близка к кубу со стороной 1400 мм, окружена графитовым отражателем и

помещена в стальной бак диаметром 2800 мм. Топливом являются блоки графита, пропитанные  $^{238}\text{U}$  с отношением ядер  $\text{U/C}=1/8000$ , загрузка  $^{235}\text{U}$  составляет 9 кг.

Благодаря тому, что активная зона не содержит металлических конструкционных материалов, допускается ее высокий разогрев, локально до  $2000^\circ\text{C}$ , что определяет очень высокое энерговыделение в импульсе, до 5,2 ГДж, хотя реактор и не имеет системы охлаждения. Кладка реактора разделена на подвижную и неподвижную части. Подвижная часть сечением  $800\times 800\text{ мм}^2$  смонтирована на металлическом столе стальной колонны.

Испытуемые образцы помещаются в центральном канале диаметром 290 мм в специальных ампулах, обеспечивающих контроль температур топлива, оболочки и теплоносителя, а также давления в ТВЭЛе. Импульсы мощности инициируются вводом положительной реактивности стержнями управления, а гасятся отрицательным температурным эффектом. В центральном канале флюенс тепловых нейтронов достигает  $3,7\cdot 10^{16}\text{ см}^{-2}$ , быстрых –  $10^{15}\text{ см}^{-2}$ , максимальная плотность потока  $7\cdot 10^{16}\text{ см}^{-2}\cdot\text{с}^{-1}$ , длительность импульса может регулироваться от 0,1 с до тысяч секунд.

Функционально и конструктивно ИИН отличаются значительным многообразием. Например, активная зона реактора TRIGA размещается в бассейне под слоем воды и набирается из стержневых ТВЭЛов, в которых в качестве топлива используется гомогенная смесь гидрида циркония с ураном. Оболочка ТВЭЛов выполнена из алюминия, наружный диаметр оболочки 38,1 мм. Сверху и снизу в оболочку установлены 100 мм графитовые пробки (торцовые отражатели). Между топливной композицией и графитовыми пробками располагаются диски из оксида самария, диспергированного в алюминии. Активная зона реактора окружена графитовым отражателем.

Благодаря сильной зависимости спектра, следовательно, и баланса нейтронов от температуры топлива, в состав которого входит водородный замедлитель, реактор TRIGA обладает большим и практически мгновенным отрицательным температурным коэффициентом. Реактор может работать как в стационарном, так и в импульсном режимах. В системе органов регулирования предусмотрен стержень быстрого перемещения через активную зону, который создает избыточную реактивность по мгновенным нейтронам.

Основные характеристики реактора TRIGA-МК-III в Сан-Диего (США): стационарная мощность 1 МВт, импульсная мощность (в пике импульса) 1000 МВт, диаметр активной зоны 50,8 см, высота активной зоны 28,1 см, критическая загрузка  $^{235}\text{U}$  2,7 кг, рабочая загрузка 3,6 кг, материал отражателя – графит. Теплоотвод от активной зоны обеспечивается естественной циркуляцией воды.

В быстрых ИРСД время жизни мгновенных нейтронов и длительность нейтронного импульса существенно меньше, чем в тепловых. Механизм самогашения определяется главным образом температурным расширением топлива, а не температурной зависимостью ядерных сечений. Первым импульсным реактором аperiodического действия была установка GODIVA-1 (США) с металлической активной зоной. Реакторы GODIVA, представляющие собой критическую сборку без отражателя, обеспечивают получение около  $2\cdot 10^{17}$  делений и флюенса быстрых нейтронов  $0,8\cdot 10^{14}\text{ см}^{-2}$ . Длительность импульса 50–100 мкс. Спектр нейтронов – несколько смягченный спектр деления.

Обычно в качестве топлива в быстрых ИРСД используется уран-молибденовый сплав с массовой долей молибдена 1,5–10 %. Достоинствами таких реакторов являются их компактность, жесткий спектр нейтронов, близкий к спектру нейтронов деления, малая длительность импульса и высокая плотность потока нейтронов. Номинальные, не повреждающие активную зону нейтронные импульсы в этих реакторах характеризуются скачком температуры в области наибольшего разогрева, равным 300–450 К.

В РФЯЦ ВНИИТФ было создано семейство реакторов БАРС. Они используются для исследований в различных институтах России. Реактор БАРС–5, эксплуатируемый с 1986 г., отличается от созданных ранее реакторов этого типа тем, что в нем реализована идея связанных активных зон. Он имеет две одинаковые активные зоны из уран-молибденового сплава с 90 %  $^{235}\text{U}$ . Диаметр активной зоны 226 мм, высота 218 мм, загрузка топлива в каждой зоне 123 кг, диаметр центральной полости для размещения облучаемых образцов 60 мм. Возможно перемещение зон относительно друг друга с изменением расстояния между их центрами от 0,33 до 1,5 м. Они могут работать в стационарном и импульсном режимах как независимо одна от

другой, так и совместно. В импульсе при одновременной работе обеих зон суммарное число делений в зонах  $5 \cdot 10^{17}$ , флюенс в зоне облучения  $10^{15} \text{ см}^{-2}$ , длительность импульса 40 мкс.

#### *Стационарные реакторы с механическим прерывателем*

Комбинацию реактора непрерывного действия с механическим прерывателем выводимого из реактора пучка нейтронов можно рассматривать как импульсный источник нейтронов. Механический прерыватель (селектор) «вырезает» из пучка нейтронов малые по времени нейтронные импульсы. Из реактора одновременно вылетают нейтроны всех энергий, но, в зависимости от скорости, достигают образца в разное время. Поэтому, чем короче импульсы, тем меньше погрешности в определении момента старта нейтронов и их энергии при взаимодействии с образцом (детектором), расположенным на некотором расстоянии от источника (пролетной базе), и тем выше разрешающая способность спектрометра.

Современный механический прерыватель – весьма сложный прибор, поскольку при его конструировании приходится сочетать высокую частоту вращения ротора для получения коротких импульсов и его массу, достаточную для максимального перекрытия пучка на время, пока щели неподвижного коллиматора и ротора не совпадут. Для повышения точности измерений прерыватели делают многороторными с узкими щелями площадью сечения около  $1 \text{ мм}^2$ . Частота вращения роторов достигает  $10\,000 \text{ мин}^{-1}$ . Синхронность вращения роторов обеспечивается подвешиванием их в магнитном поле и специальной системой синхронизации.

Учитывая, что длительность и точность измерений на пучке зависит от скорости счета детектора, основное требование, предъявляемое к исследовательскому пучковому реактору, заключается в обеспечении высокой плотности потока нейтронов. В 1961 г. в России (г. Дмитровград) был пущен высокопоточный реактор СМ-2, который предназначался для наработки трансурановых элементов, материаловедческих испытаний, а также для исследований по ядерной физике и физике твердого тела на выведенных нейтронных пучках. Высокая концентрация топлива в активной зоне, малое содержание воды обусловили относительно «жесткий» спектр нейтронов, что позволило без существенного ухудшения физических характеристик реактора использовать термостойкие конструкционные материалы и значительно увеличить тепловые нагрузки. Параметры СМ-2 были рекордными для стационарных реакторов. При мощности 50 МВт плотность потока тепловых нейтронов составляла  $3 \cdot 10^{15} \text{ см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$ , для нейтронов с  $E > 1 \text{ МэВ}$  она превышала  $10^{15} \text{ см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$ , средняя энергонапряженность активной зоны равнялась  $4,5 \text{ МВт/дм}^3$ . В дальнейшем мощность СМ-2 была увеличена до 100 МВт, что несколько улучшило его параметры. На СМ-2 было предусмотрено пять горизонтальных каналов для вывода нейтронных пучков. При мощности 100 МВт плотность потока тепловых нейтронов в пучке составила  $1,35 \cdot 10^{15} \text{ см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$ .

Среди других следует упомянуть высокопоточный реактор НЕВР с «жестким» спектром нейтронов, построенный в США в Брукхейвенской национальной лаборатории в 1965 г. Этот реактор имеет девять горизонтальных каналов, направленных по касательной к активной зоне. Такая ориентация каналов, хотя и уменьшила плотность потока тепловых нейтронов в пучках до  $0,7 \cdot 10^{15} \text{ см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$ , но позволила снизить на детекторах в 30 раз фон быстрых нейтронов и в 100 раз фон гамма-квантов по сравнению с радиальным расположением каналов.

Среди действующих высокопоточных реакторов особого внимания заслуживает GHFR мощностью 60 МВт, пущенный в Гренобле (Франция) в 1971 г. Он специально создан как источник нейтронов для исследований на выведенных пучках. В качестве теплоносителя, замедлителя и отражателя используется тяжелая вода, топливо – сплав высокообогащенного урана с алюминием. В GHFR смонтированы жидкодейтериевый замедлитель для получения холодных нейтронов, горячий графитовый источник нейтронов (2000 К), одиннадцать горизонтальных пучковых каналов с плотностью потока тепловых нейтронов около  $10^{15} \text{ см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$ , четыре оборудованных пневмопочтой канала для быстрой доставки облученных образцов и другое экспериментальное оборудование.

В настоящее время под Санкт-Петербургом завершается строительство высокопоточного реактора ПИК, предназначенного для широкого круга исследований, включая работы по нейтронной спектроскопии. На реакторе запроектировано шестнадцать нейтронных пучков, из которых семь имеют большую пролетную базу. Ожидается, что при мощности 100 МВт плотность потока тепловых нейтронов в активной зоне составит  $4 \cdot 10^{15} \text{ см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$ , в отражателе – около  $1,2 \cdot 10^{15} \text{ см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$ , а на выходе из пучков – около  $10^{12} \text{ см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$ , то есть будут превышены



потоки, достигнутые на GHFR. Следует, однако, заметить, что эти рекордные характеристики близки к технологическому и экономическому пределам для реакторов непрерывного действия. К тому же, основной недостаток таких источников нейтронов, применительно к исследованиям на пучках методом «времени пролета», заключается в низкой эффективности использования их мощности, поскольку более 99 % нейтронов поглощаются прерывателями бесполезно.

#### *Импульсные реакторы периодического действия и бустеры*

Импульсному характеру отбора излучения в экспериментах методом «времени пролета» наиболее полно отвечают режим работы и нейтронные характеристики импульсных реакторов периодического действия (ИРПД). Идея ИРПД состоит в осуществлении периодической генерации нейтронных импульсов путем периодического перемещения части реактора, вызывающего изменение реактивности. Процесс периодического изменения реактивности называется модуляцией реактивности, а устройство, осуществляющее этот процесс, – модулятором реактивности. В 1960 г. в Объединенном институте ядерных исследований (г. Дубна) состоялся пуск первого в мире импульсного быстрого реактора периодического действе (ИБР).

Неподвижная часть активной зоны ИБР набрана из стержневых ТВЭЛов с металлическим плутонием, а модулятор, являющийся подвижной частью активной зоны, выполнен в виде вкладышей из  $^{235}\text{U}$ , запрессованных в два вращающихся с разной частотой стальных диска. Импульсы мощности развиваются только при одновременном совмещении обоих вкладышей с неподвижной частью активной зоны. Активная зона и модулятор охлаждаются воздухом. Первоначально средняя мощность ИБР составляла 1 кВт, максимальная (пиковая) мощность в импульсе 5 МВт, а длительность импульса 40 мкс. Реконструкция реактора позволила повысить его параметры. Для проведения исследований с тепловыми нейтронами реактор окружен водяными замедлителями, для вывода нейтронных пучков предусмотрено восемь экспериментальных каналов с пролетными базами длиной 10–1000 м.

Сохранив в значительной степени универсальность, свойственную стационарным исследовательским реакторам, ИРПД обеспечивают существенную экономию нейтронов и позволяют получить высокие значения плотности нейтронного потока, не достижимые для стационарных реакторов. Например, в экспериментах с энергетическим анализом резонансных нейтронов ИБР при средней мощности 3 кВт эквивалентен стационарному реактору мощностью 20–30 МВт, а пиковая плотность потока нейтронов в замедлителе ИБР - 30 приблизительно такая же, как в нейтронных ловушках самых высокопоточных реакторов CM-2 и HFBR.

Самым мощным ИРПД на быстрых нейтронах является реактор ИБР-2, построенный в 1970-е гг. в Дубне. При средней мощности реактора 2 МВт его мощность в импульсе достигает 1500 МВт, а импульсная плотность потока тепловых нейтронов на поверхности окружающих активную зону замедлителей ( $10^{16} \text{ см}^{-2} \text{ с}^{-1}$ ) является рекордной для всех нейтронных источников.

От своих предшественников – реакторов ИБР и ИБР-30, мощность которых ограничена воздушным охлаждением подвижных и неподвижных частей активной зоны, ИБР-2 отличается высокоинтенсивным натриевым охлаждением активной зоны и отсутствием подвижных частей, выполненных из делящегося материала, то есть материала с большим удельным тепловыделением.

При увеличении энергии нейтронов, для обеспечения хорошего разрешения, необходимы короткие импульсы с длительностью порядка микросекунд и меньше. Этому требованию отвечают бустеры и неразмножающие мишени ускорителей заряженных частиц.

Бустер, реализующий преимущества ускорителя и реактора, впервые был создан в 1959 г. в Харуэлле (Великобритания). Пучок ускоренных до  $E = 15 \text{ МэВ}$  электронов вводился в реактор с эффективным коэффициентом размножения нейтронов  $k_{эфф} \sim 0,9$ . При взаимодействии с материалом активной зоны электроны теряли энергию в виде тормозного  $\gamma$ -излучения и в результате реакции ( $\gamma, n$ ) конвертировались в нейтроны, которые размножались вследствие делений в среде активной зоны. Таким образом, импульсы электронов, генерируемые ускорителем, превращались в нейтронные импульсы. Недостатком этого бустера является низкий коэффициент размножения, который не превышает 15 для уранового и 50 для плутониевого топлива при фоновой мощности (в промежутках между импульсами) около 10 %.



Преимущества бустера наиболее полно реализованы в импульсном бустере на базе реактора ИБР-30, где глубокая модуляция реактивности позволила достичь коэффициента размножения в импульсе порядка 100–200 при низком фоне (менее 5 %), определяемом средней мощностью. ИБР-30 работает в бустерном режиме с линейным ускорителем электронов ЛУЭ-40. Ток пучка электронов 0,2 А. Энергия электронов 44 МэВ. Средняя мощность 7 кВт. Характеристики ИРПД и бустеров приведены в таблице 4.3.17.

Таблица 4.3.17. Характеристики импульсных реакторов периодического действия и бустеров

Характеристика	Реактор (год пуска)					Бустер (название, год пуска)		
	ИБР, Россия (1960)	ИБР-30, Россия (1969)	ИБР-2, Россия (1981)	УАУОИ, Япония (1971)	SORA, Италия (проект)	ИБР-30 + ЛУЭ-40, Россия (1970)	HELIOS, Великобритания (1959)	ИБР-2 + ЛИУ-30, Россия (проект)
Топливо	Pu, U	Pu,U	PuO <sub>2</sub>	U	U-Mo	Pu, U	U	PuO <sub>2</sub>
Средняя мощность, кВт	6	25	2000	2	1000	7	3	400
Частота импульсов, Гц	8,3 - 83	4 - 100	5 - 25	1 - 15	50	100	300	25
Длительность импульсов, мкс	50	70	230	58	65	4	0,1	5
Коэффициент усиления	-			-	-	200	10	100
Пиковая мощность, МВт	25	100	2000	30	300	18	24	2000
Доля фоновой мощности, %	<5	<5	<6	-	17	<5	<6	<6
Плотность потока тепловых нейтронов на поверхности замедлителя, см <sup>-2</sup> с <sup>-1</sup> :								
Средняя	$1,5 \cdot 10^{10}$	$6 \cdot 10^{10}$	$10^{13}$	-	$2,5 \cdot 10^{12}$	$4 \cdot 10^9$	$2 \cdot 10^9$	$2,5 \cdot 10^{11}$
Пиковая	$4 \cdot 10^{13}$	$1,2 \cdot 10^{14}$	$10^{16}$	-	$4,5 \cdot 10^{14}$	$10^{13}$	-	$10^{15}$

#### Импульсные нейтронные источники на базе ускорителей заряженных частиц

Для получения мощных и коротких по длительности нейтронных импульсов используются ускорители с высокими потоками заряженных частиц в совокупности с мишенями, на материалах которых происходит конверсия заряженных частиц в нейтроны. Выход нейтронов тем выше, чем выше ток и энергия частиц и чем выше плотность и зарядовый номер материала мишени. При использовании пучка электронов конверсия электронов в нейтроны происходит в веществе, главным образом, благодаря фотоядерной реакции. При использовании пучка протонов генерация нейтронов происходит вследствие как их прямого выбивания из ядер, так и, в значительно большей степени, – их эмиссии из возбужденного ядра.

Основная часть энергии пучка заряженных частиц в результате различных реакций взаимодействия с материалом мишени выделяется в мишени в виде тепла. Распределение тепловыделения в мишени зависит от вида и энергии заряженной частицы, материала и конструкции мишени. В электронном пучке значительная часть энергии тратится непроизводительно на ионизацию атомов мишени. Так, при энергии электронов  $E_e = 100$  МэВ в урановой мишени примерно на 25 электронов генерируется всего один нейтрон. Генерация нейтронов с помощью протонного пучка энергетически значительно эффективнее, чем генерация электронами или даже путем деления ядер урана и плутония. При энергии протонов

$E_p = 1$  ГэВ каждый протон выбивает из урановой мишени до 30 нейтронов. Тепловыделение в мишени и элементах конструкции, отнесенное к одному испущенному нейтрону, при генерации протонами оказывается примерно в 30 раз меньше, чем для электронов с энергией 100 МэВ, и приблизительно в 3 раза меньше, чем при делении урана или плутония. Энергия  $\gamma$ -излучения, сопровождающего испускание нейтронов, в случае протонного пучка в 1000 раз меньше, чем в случае электронного, и в 200 раз меньше, чем в реакции деления.

Характеристики наиболее известных источников нейтронов на базе разных типов ускорителей заряженных частиц приведены в табл. 4.3.18.

Таблица 4.3.18. Характеристики нейтронных источников на базе ускорителей заряженных частиц

Источник	Энергия, МэВ, и тип частиц*	Средний ток пучка, мА	Длительность импульса, мкс	Частота импульсов, Гц	Средняя скорость генерации нейтронов $S_{cp} \cdot 10^{-14}, c^{-1}$	Пиковая скорость генерации нейтронов $S_n \cdot 10^{-18}, c^{-1}$
Линейные ускорители электронов						
"ORELA", Ок-Ридж, США	140, <i>e</i>	0,42	3 - 1000	100	1	3,3
"ФАКЕЛ", РНЦ КИ, Москва	60, <i>e</i>	0,83	10 - 5500	150	4	0,5
"HELIOS", Харуэлл, Великобритания	136, <i>e</i>	0,9	5 - 5000	300	3,6	3,2
Циклотроны						
Синхроциклотрон, ИЯФ, Санкт-Петербург	100, <i>p</i>	0,001	10	40	1	200
Изохронный циклотрон, Карлсруэ, Германия	50, <i>d</i>	0,01	0,8	$10^4 - 10^5$	2	7
Изохронный циклотрон, ИЯФ, Киев	100, <i>p</i> 60, <i>d</i>	0,05	1 - 2	$10^3 - 10^5$	10	3
Ускорители протонов (мезонные фабрики)						
IPNS, ANL, США	450	0,015	0,25	30	10	100
КЕК, Цукуба, Япония	500	0,006	100 - 150	20	4	0,2
ISIS, лаб. им. Розерфорда, Великобритания	800	0,2	0,4	50	300	1000
MLNSC, LANL, США	800	0,1	-	20	150	-
Мезонная фабрика, ИЯИ, Троицк, Россия, строится	600	0,5	20 - 100	10 - 100	-	-
NSNS, ORNL, США, строится	1000	1 - 5	-	20 - 60	2000 - 10000	-
ESS, Швейцария, строится	1330	1 - 3	-	50	2700 - 8000	-
JAERI, Япония, строится	1500	1 - 5	-	50	3000 - 15000	-

*e* - электрон; *p* - протон; *d* - дейтрон.

В 1970-е гг. наиболее интенсивными источниками резонансных нейтронов в энергетическом диапазоне  $10-10^6$  эВ были мишени ЛУЭ "ORELA" (США). Четыре мишени

разного типа мощностью до 75 кВт могли попеременно устанавливаться на пучке электронов и генерировать нейтронные пучки в десяти экспериментальных каналах с пролетными базами длиной до 200 м. Для снижения фона быстрых нейтронов и фотонов большинство каналов располагалось по касательной к мишеням. Каналы были оборудованы 18 измерительными станциями. Мишени были выполнены из тантала. Перестановка и наладка мишеней были дистанционными, автоматическими.

ЛУЭ «Факел», работающий в РНЦ Курчатовский институт, создавался как источник нейтронов для спектроскопии по времени пролета. Он оборудован двумя мишенями для генерации быстрых и медленных нейтронов. Для экспериментов с тепловыми нейтронами предусмотрено пять пучков с пролетными базами длиной до 50 м, а с быстрыми – восемь пучков с пролетными базами длиной до 290 м. Источником тепловых нейтронов сначала была охлаждаемая водой танталовая мишень, окруженная водяным замедлителем толщиной около 6 см. Модернизация ускорителя и мишени предполагала повышение энергии электронов до  $E_e = 90$  МэВ, тока до 1,1 А и замену тантала диоксидом обогащенного урана. Дальнейшее увеличение потока нейтронов связывалось с увеличением размеров мишени и достижением коэффициента размножения нейтронов порядка 100.

ЛУЭ «HELIOS» (Харуэлл) был оборудован четырьмя мишенями, на которых возможна совместная работа благодаря устройству, перебрасывающему пучок ускорителя с мишени на мишень. Мишень для производства тепловых нейтронов была выполнена в виде охлаждаемых водой пластин из природного урана, оборудована 16 экспериментальными каналами, ее мощность 90 кВт.

В институте ядерной физики им. Б.П. Константинова (Санкт-Петербург) на базе протонного синхротрона с  $E_p = 1$  ГэВ действуют нейтронный источник (свинцовая мишень) и спектрометр «ГНЕЙС», наиболее эффективный в диапазоне 1–100 кэВ. Для снижения фона быстрых нейтронов и фотонов полиэтиленовый замедлитель расположен над мишенью так, что оси нейтронных пучков и протонного пучка не пересекаются. Аналогичные спектрометры на базе синхротрона действуют в Колумбийском университете (США). Они применяются в основном для измерения полных сечений стабильных нуклидов с рекордным разрешением.

Наиболее короткие импульсы протонов и дейтронов получают на изохронных циклотронах, что обусловило их использование в ядерно-физических исследованиях при энергии нейтронов от сотен кэВ до десятков МэВ. В институте ядерной физики (г. Киев) на изохронном циклотроне получены нейтронные импульсы длительностью менее 3 нс, при этом энергетическое разрешение в области 0,1–1 МэВ составляет около  $10^4$ .

В последние годы наиболее интенсивно развиваются источники нейтронов на базе сильноточных протонных ускорителей – мезонных фабрик. Принцип действия таких нейтронных источников заключается в следующем. Ускоренные до высокой энергии (около 500 – 1500 МэВ) протоны падают на мишень из тяжелого металла, взаимодействуют с нуклонами ядер, передавая им значительную часть своей энергии, достаточную для выбивания из ядра быстрых вторичных частиц, которые в свою очередь, вызывают появление следующих поколений частиц, и так далее. Таким образом, возникает каскадный процесс. Оставшиеся сильно возбужденные ядра испускают свою энергию путем «испарения» нейтронов и в значительно меньшей степени (из-за наличия кулоновского барьера) протонов и других заряженных частиц.

В Великобритании на базе протонного ускорителя с  $E_p = 800$  МэВ создан импульсный источник нейтронов. Мишень выполнена из пластин обедненного урана, разделенных зазорами, в которых циркулирует охлаждающая тяжелая вода. Сверху и снизу к мишени примыкают замедлители, из которых два водяных работают при 293 К, один метановый – при  $T=77$  К и один пароводородный – при  $T=20$  К. Отражатели мишени – бериллий и вода. Замедлители просматриваются 18 нейтронными каналами.

Американский протонный синхротрон IPNS работает на две урановые мишени, одна из которых окружена углеродным и бериллиевым отражателями и предназначена для исследований по нейтронной спектроскопии. Замедлители – жидкий водород и метан – расположены сверху и снизу мишени.

Хотя импульсные источники нейтронов за базе ускорителей заряженных частиц по длительности импульса существенно превосходят импульсные реакторы, они пока уступают последним по средней плотности потока тепловых нейтронов в пучках, которая к настоящему времени не превышает  $4 \cdot 10^{12} \text{ см}^{-2} \text{ с}^{-1}$ . Однако ввод новых источников на строящихся сейчас ускорителях позволит увеличить средний поток тепловых нейтронов до  $10^{14} \text{ см}^{-2} \text{ с}^{-1}$ .

#### *Термоядерные источники нейтронов*

Источниками нейтронов являются и установки по управляемому термоядерному синтезу с разными принципами разогрева и удержания плазмы. В установке «плазменный фокус» в импульсе образуется до  $10^{12}$  нейтронов, а пиковая плотность потока нейтронов превышает  $10^{18} \text{ см}^{-2} \text{ с}^{-1}$ .

В качестве наиболее перспективных нейтронных источников рассматривают лазерные термоядерные системы. Идея заключается в том, что к дейтерий-тритиевой мишени импульсно и симметрично с помощью лазерного излучения подводится энергия, которая идет на сжатие и разогрев мишени с образованием дейтерий-тритиевой плазмы. Возникающая термоядерная реакция имеет характер микровзрыва, основная часть энергии которого выделяется в виде нейтронов с энергией 14 МэВ. В Ливерморской лаборатории на установке SHIVA с твердотельным неодиевым лазером, излучающим в импульсе  $2 \cdot 10^4$  Дж, достигнут нейтронный выход в импульсе  $3 \cdot 10^{10}$  при длительности 0,1 нс. Существует проект установки SHIVA-NOVA с энергией в импульсе 1 МДж и ожидаемым выходом нейтронов  $10^{18}$ . В Лос-Аламосе создана установка GELIOS с газовым  $\text{CO}_2$ -лазером, на которой при  $E = 2,5$  кДж получен импульс длительностью 0,75 нс с выходом  $3 \cdot 10^8$  нейтронов.

Существуют предложения по достижению высокой интенсивности дейтерий-тритиевых реакции с генерацией в импульсе до  $10^{20}$  нейтронов при длительности 0,03 нс, что для пикового значения нейтронного потока на много порядков выше, чем у современных ускорителей.

#### NS4.4 ДЕТЕКТИРОВАНИЕ ЗАРЯЖЕННЫХ ЧАСТИЦ

Заряженные частицы, образующиеся при радиационном распаде, являются потенциальным источником информации о характеристиках излучателя, наиболее значимых для решения задач в области учета и контроля ядерных и радиоактивных материалов, а также их безопасного использования и хранения. К этим характеристикам относятся радиоизотопный состав и активность (масса) радионуклидов в исследуемом объекте. Для анализа указанных характеристик обычно используются два типа заряженных частиц – альфа, и бета (электроны). Каждая из них образуется в результате реализации специфических процессов, протекающих в ядрах атомов (см. курс NS.PR2 Основы ядерной физики). При этом альфа- и бета- распады часто сопровождаются вторичным гамма-излучением, использованию которого для анализа ядерных и радиоактивных материалов посвящен материал главы NS4.5. Каждый тип распада и излучения обладает своими особенностями, предоставляющими индивидуальные возможности и накладывающими специфические ограничения на методы и результаты анализов.

Спектр излучения бета-частиц является непрерывным (см. курс NS.PR2 Основы ядерной физики). К его основным характеристикам относят максимальную и среднюю энергии, которые являются характерными для данного радиоизотопа. Тем не менее, использование бета-спектра для анализа изотопного состава ограничивается следующими факторами:

- значение средних и максимальных энергий бета-излучателей часто близки друг к другу, так как большинство из них находится в энергетическом диапазоне от единиц до 10 МэВ;
- в большинстве практических ситуаций исследуемый образец содержит не один, а несколько бета-излучателей, спектры которых накладываются друг на друга. Так как ширина спектров велика, то определение изотопного состава, в случае наложения спектров, становится невозможным.

В связи с тем, что возможности бета-спектрометрии ограничены, то ее использование в области практических задач, связанных с безопасностью, учетом и контролем ядерных и радиоактивных материалов ограничивается определением активности отдельного, как правило, выраженного на общем фоне, бета-излучателя (например, определение  $^{90}\text{Sr}$  в пробах окружающей среды). При этом чувствительность и точность анализов не высока и хуже, чем в радиохимических методах анализа.

Основным методом измерения бета-частиц является их радиометрия. Радиометрическим измерениям обычно предшествует радиохимическое выделение бета-излучающего радиоизотопа. При наличии радиохимической стадии подготовки в процессах анализа бета- и альфа-излучающих радионуклидов, изготовление измеряемого образца включает несколько последовательных стадий:

- отбор и предварительная обработка представительной по содержанию контролируемого элемента пробы;
- выделение измеряемого изотопа из пробы в форме, пригодной для изготовления образца;
- изготовление образца для измерений.

Отбор и предварительная подготовка пробы должны осуществляться в соответствии с аттестованной методикой и могут включать процессы очистки от посторонних включений, сушки, измельчения, усреднения и другие, процедуры.

Выделение радиоизотопа выполняется одним из доступных химических методов, таких, например, как экстракция и сорбция. Причем конечный продукт должен быть пригоден для предусмотренной методикой процедуры изготовления образца.

Изготовление образца для измерений заряженных частиц обычно предусматривает получение тонкого слоя, содержащего интересующий радионуклид на поверхности. Этого обычно добиваются путем осаждения равномерного тонкого слоя материала методом электрохимического осаждения, а также путем избирательной фильтрации радионуклида тонким мембранным фильтром.

Более подробно методы разрушающего анализа рассмотрены в главе NS4.7 курса. Наличие стадии радиохимической подготовки проб является основным недостатком анализа,

так как значительно усложняет и замедляет процедуру его выполнения, а также делает ее дорогостоящей.

Для бета-радиометрических измерений могут использоваться любые типы детекторов, описанные в главе NS4.2. Однако в процессе анализа необходимо учитывать особенности регистрации бета-частиц, более подробное обсуждение которых сделано в разделе NS4.4.1.

Учитывая выше обозначенную специфику, типичной областью применения бета-радиометрии является анализ загрязнений рабочих поверхностей, технологических проб (например, растворов), а также определение наличия чистых бета-излучателей в окружающей среде ( $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{14}\text{C}$ ,  $^3\text{H}$  в пробах воды, почвы, растительности и так далее).

Наличие альфа-частиц в измеряемом образце является индикатором присутствия в нем тяжелых ядер, то есть потенциального присутствия ядерного материала. В отличие от бета-излучения, спектр альфа-частиц является дискретным и поэтому, наряду с гамма-излучением (см. главу NS4.5), может использоваться для определения изотопного состава излучателей. Возможности альфа-спектрометрии более подробно обсуждены в разделе NS4.4.2.

При условии учета особенностей излучения, для регистрации альфа-частиц могут использоваться любые типы детекторов, описанные в главе NS4.2. Также как и в случае бета-излучения, основным недостатком радиометрии и спектрометрии альфа-частиц, является необходимость предварительной радиохимической обработки проб и наличие специфической процедуры подготовки образцов для измерений. Тем не менее, альфа-спектрометрический анализ находит применение при исследованиях облученного ядерного материала (например, определения содержания в нем  $^{238}\text{Pu}$  и других трансурановых изотопов), а также практически незаменим в задачах анализа малых количеств ядерных материалов в пробах окружающей среды.

Одной из главных задач детектирования заряженных частиц является измерение активности радиоактивных альфа- и бета-источников. Активность источников измеряют, регистрируя их излучение. Если рядом с источником расположить соответствующий детектор, то регистрируемый им за единицу времени эффект  $a$  будет пропорционален активности источника  $A$ :

$$a = \varepsilon A. \quad (4.4.1)$$

Под показаниями детектора может пониматься число отсчетов счетчика электрических импульсов, показания токового прибора, почернение фотопластинки или какая-нибудь другая непосредственно измеряемая в опыте величина. Коэффициент пропорциональности  $\varepsilon$ , который называется эффективностью измерительной установки – радиометра, зависит от ряда факторов: эффективности самого детектора  $\varepsilon_d$ , геометрического фактора  $G$ , и тому подобное. Если  $\varepsilon$  известна, то определение активности сводится к элементарной операции. Однако определение этого коэффициента зачастую оказывается весьма сложным. В разделе рассматриваются общие подходы к решению этой задачи, а также особенности, возникающие при регистрации различных видов излучения.

Радиометрические методы измерения, также как и детекторы излучения, подразделяют на интегральные и дифференциальные. Интегральными называются методы измерений, при которых регистрируется суммарный эффект от более или менее длительного воздействия излучения на детектор (накопление электрического заряда на пластинах конденсатора, образующего ионизационную камеру; выделение тепла в калориметре; потемнение стекла и тому подобное). Дифференциальными называют методы, при которых регистрируются отдельные частицы (электрические импульсы в камерах и счетчиках; треки частиц в фотопластинках, камерах Вильсона, искровых и стриммерных камерах и тому подобное). Интегральные методы требуют, как правило, применения более простых технических средств, поэтому они появились и получили развитие раньше, чем дифференциальные. Дифференциальные методы дают значительно большую информацию о протекающих процессах и явлениях, позволяют более легко и надежно разделять частицы разных типов и, в частности, избавляться от фона посторонних излучений. К настоящему времени дифференциальные методы исследований в ядерно-физических экспериментах почти полностью вытеснили интегральные. Тем не менее, интегральные методы находят и в настоящее время определенное применение в некоторых специальных случаях.

Все методы измерений подразделяются на два основных способа получения конечного результата, абсолютные и относительные. Абсолютными называются измерения, при которых прежде всего определяется коэффициент  $\varepsilon$  – эффективность измерительного устройства (радиометра), а затем по показаниям детектора  $\alpha$  – находится истинное значение параметра источника  $A$ . Значительные трудности при выполнении этой операции заставляют всегда, когда это только возможно, прибегать к относительным измерениям, при которых показания детектора при работе с исследуемым источником  $a_x$  сравниваются с показаниями  $a_y$  от некоторого эталонного источника, активность которого  $A_y$  заранее известна. Если это сравнение можно выполнить так, чтобы значения коэффициентов  $\varepsilon$  в обоих измерениях были одинаковыми, то из соотношений:

$$a_x = \varepsilon A_x, \quad a_y = \varepsilon A_y \quad (4.4.2)$$

следует

$$A_x = a_x \cdot A_y / a_y, \quad (4.4.3)$$

и таким образом, неизвестную активность  $A_x$  можно определить по непосредственно измеряемым при проведении эксперимента показаниям детектора  $a_x$  и  $a_y$ , а также заранее известной величине  $A_y$ . Ниже рассматриваются, главным образом, абсолютные методы измерений.

Если изотропный точечный источник излучения и детектор конечных поперечных размеров расположены на одной оси относительно друг друга, то вероятность попадания частицы, испущенной источником, в детектор определяется величиной относительного телесного угла, под которым детектор виден из точки расположения источника. Этот относительный телесный угол  $G$  определяется как геометрический фактор:

$$G = \Delta\Omega / 4\pi. \quad (4.4.4)$$

Вероятность того, что частица вылетит в сторону детектора и будет им зарегистрирована, равна произведению  $\varepsilon_d \cdot G$ , где  $\varepsilon_d$  – собственная физическая эффективность детектора. Чтобы получить эффективность радиометра  $\varepsilon$ , в это выражение необходимо ввести, в качестве сомножителей, ряд поправок на некоторые побочные эффекты: самопоглощение частиц в источнике, поглощение и рассеяние частиц в воздухе на пути к детектору и другие. Эти поправки  $f_1, f_2, \dots, f_n$ , зависят от вида излучения и конкретных условий проведения эксперимента. Окончательно:

$$\varepsilon = \varepsilon_d \cdot G \cdot f_1 \cdot f_2 \cdot \dots \cdot f_n. \quad (4.4.5)$$

Сведения о собственной физической эффективности детектора  $\varepsilon_d$  приведены в описании процессов (вероятностей) взаимодействия частиц с веществом (см. раздел 2.3 курса NS.PR2). Способы расчета поправочных коэффициентов  $f_1, f_2, \dots, f_n$  будут рассматриваться далее по тексту. Что касается телесного угла  $\Delta\Omega$ , необходимого для расчета геометрического фактора  $G$ , то в самом общем случае его можно найти интегрированием по поверхности детектора. Для некоторых частных случаев существуют упрощенные формулы. Так, например, для круглого детектора:

$$\Delta\Omega = 2\pi \left( 1 - \frac{1}{\sqrt{1 - D^2/4d^2}} \right), \quad (4.4.6)$$

где  $d$  – расстояние между детектором и источником;  $D$  – апертурный диаметр детектора.

В случае протяженного (неточечного) источника, размеры которого сравнимы с величинами  $d$  и  $D$ , определение фактора  $G$  значительно сложнее, и даже в более простых случаях используемые приближенные формулы имеют довольно громоздкий вид.

Трудности нахождения телесного угла  $\Delta\Omega$  с достаточной для проведения абсолютных измерений точностью привели к попыткам создания детектора, рабочее тело которого полностью, со всех сторон окружало бы исследуемый источник. В такой детектор попадали бы все частицы, вылетающие из источника по любым направлениям в пределах полного телесного угла  $4\pi$ , откуда этот метод и получил название –  $4\pi$ -геометрия. В случае идеальной  $4\pi$ -геометрии  $G=1$ . Примерами реализации условий, приближающихся к  $4\pi$ -геометрии, являются: введение радиоактивного вещества в наполняющую смесь газоразрядного счетчика или камеры (эту разновидность метода называют также методом внутреннего газового счета, или методом счетчиков внутреннего наполнения); расположение тонкого пленочного источника между двумя кристаллами сцинтилляционных счетчиков; помещение источника гамма-излучения или нейтронов в бак с детектирующим веществом и многие другие. Промежуточный между двумя рассмотренными методами измерений – метод  $2\pi$ -геометрии, при котором источник располагается на плоскости, отделяющей рабочее тело детектора от окружающей среды. В этом случае  $G=0,5$ .

Если при одном акте радиоактивного распада образуется две (или больше) частицы, то активность можно определить регистрацией совпадений импульсов от двух независимых детекторов. Суть метода состоит в следующем. Пусть для определенности при каждом акте распада испускаются  $\beta$ -частица и фотон  $\gamma$ -излучения. Пусть, далее, вблизи источника расположено два детектора, один из которых регистрирует только  $\beta$ -частицы, а другой – только фотоны. Скорости счета этих детекторов определяются уравнением 4.4.1, а именно:

$$a_{\beta} = \varepsilon_{\beta} \cdot A; \quad (4.4.7)$$

$$a_{\gamma} = \varepsilon_{\gamma} \cdot A. \quad (4.4.8)$$

Если импульсы от обоих детекторов подать на схему совпадений, то при отсутствии угловой корреляции между направлениями вылета  $\beta$ -частиц и фотонов  $\gamma$ -излучения число регистрируемых совпадений будет:

$$a_{\beta\gamma} = \varepsilon_{\beta} \cdot \varepsilon_{\gamma} \cdot A. \quad (4.4.9)$$

Из трех последних соотношений следует:

$$A = \frac{a_{\beta} \cdot a_{\gamma}}{a_{\beta\gamma}}. \quad (4.4.10)$$

Таким образом, активность источника оказывается выраженной только через измеряемые в опыте скорости счета детекторов и число совпадений, а неизвестные эффективности регистрации  $\varepsilon_{\beta}$  и  $\varepsilon_{\gamma}$  сократились. Однако при проведении конкретных измерений и в этом случае требуется введение поправок, которые обсуждаются ниже.

Если известна энергия распада  $Q$ , то активность источника можно определить калориметрическим методом по интегральному тепловому эффекту, измеряемому обычным калориметром (см. раздел 4.8.2 данного курса). Следует только иметь в виду, что излучение помещенного в калориметр источника может частично проникать через его стенки и уносить некоторую долю энергии в окружающее пространство. Обозначая долю поглощаемой в калориметре энергии  $f_k$ , можно связать количество выделившегося в калориметре тепла  $q$  в 1 секунду с активностью источника  $A$ :

$$q = Q \cdot f_k \cdot A. \quad (4.4.11)$$

Аналогия этого выражения с 4.4.1 очевидна. Геометрический фактор здесь практически равен единице, поскольку выполняется условие  $4\pi$ -геометрии. Эффективность детектора также можно считать равной единице, поскольку каждая порция энергии дает свой вклад в суммарный эффект. Поправки на самопоглощение, рассеяние и поглощение излучения в стенках ампулы вводить не требуется. В этом и есть одно из основных преимуществ метода. В результате с точностью до коэффициента  $f_k$  активность равна числу порций энергии  $\frac{q}{Q}$ , получаемых калориметром от источника.



При измерениях с калориметром безразлично, какие частицы образуются при распаде. Важно лишь, чтобы вся энергия распада оставалась в калориметре. Поэтому применять калориметрический метод при определении активности источников, дающих сильно проникающее излучение (жесткие фотоны или нейтроны), не рекомендуется.

Основной недостаток калориметрического метода связан с его низкой чувствительностью. Источник активностью 1 Ки выделяет в течение 1 часа количество тепла, равное  $5f_k Q$  кал. (здесь  $Q$  в МэВ). Поэтому метод пригоден для измерений активности лишь достаточно мощных источников излучения.

Погрешность метода складывается из погрешностей тепловых измерений, погрешностей в принимаемых значениях  $Q$  и погрешностей поправочного множителя  $f_k$ . Последние особенно велики, если значительная доля энергии распада приходится на сильно проникающее излучение.

#### NS4.4.1 Детектирование электронов

Способы детектирования  $\beta$  – частиц и  $\alpha$  – частиц во многом аналогичны. Однако, существенные различия в поведении частиц при их прохождении через вещество, накладывают специфические особенности на конструкцию детекторов. Большие, по абсолютной величине, пробеги  $\beta$  – частиц в веществе, по сравнению с пробегами  $\alpha$  – частиц, позволяют изготавливать детекторы с более толстыми стенками. С другой стороны, сильное рассеяние  $\beta$  – частиц определяет их существенно меньшую ионизирующую способность, а также возможность покинуть детектор, тогда как регистрация  $\alpha$  – частицы, попавшей в рабочее тело детектора, происходит практически со 100%-ой вероятностью. В качестве детекторов для регистрации  $\beta$  – частиц обычно используют ионизационные камеры, сцинтилляционные счетчики с органическими кристаллами (антрацен, стильбен, сцинтиллирующая пластмасса на основе полистирола), торцовые счетчики Гейгера–Мюллера. Все названные детекторы должны иметь тонкое (порядка 10–15 мг/см<sup>2</sup>) входное окно. При измерении активности радиоактивного источника  $\beta$  – частиц необходимо предварительно определить эффективность  $\beta$  – радиометра, то есть отношение количества зарегистрированных  $\beta$  – частиц к количеству попадающих на входное окно детектора. В общем виде эффективность определяют по формуле:

$$\varepsilon = \varepsilon_d \cdot G \cdot f_i \cdot f_r \cdot f_o, \quad (4.4.12)$$

где:  $f_o$  – поправочный коэффициент, учитывающий поглощение и рассеяние  $\beta$  – частиц во входном окне детектора и в слое воздуха между счетчиком и источником  $\beta$  – частиц;

$f_i$  – поправочный коэффициент самопоглощения  $\beta$  – частиц в самом источнике;

$f_r$  – поправочный коэффициент обратного рассеяния  $\beta$  – частиц от подложки источника в сторону детектора;

$\varepsilon_d$  – собственная эффективность регистрации попавшей в рабочее тело детектора частицы;

$G$  – геометрический фактор для точечного источника.

Далее рассматриваются отдельно каждый из сомножителей формулы 4.4.12.

В большинстве случаев измерения активности  $\beta$  – источников  $\varepsilon_d = 1$ . Однако, из-за малой плотности ионизации, по сравнению с плотностью ионизации, характерной для тяжелых заряженных частиц, некоторые  $\beta$  – частицы, пролетающие в чувствительном объеме детектора малые отрезки пути, имеют заметную вероятность не создать ни одной пары ионов. В газовых детекторах с пониженным давлением этот эффект особенно заметен. Поэтому в общем случае при прецизионных измерениях существует необходимость в проведении, на основании данных о плотности ионизации, определения значения  $\varepsilon_d$ , которое оказывается несколько меньше единицы.

Геометрический фактор  $G$  для точечного источника оценивают по формуле:

$$G = (1 - \cos \theta) / 2, \quad (4.4.13)$$

где  $\theta$  – угол между нормалью к поверхности источника и направлением вылета  $\beta$  – частицы из источника. Для неточечного источника, радиус которого  $r$  много меньше расстояния между источником и детектором  $d$ :

$$G = \left\{ 1 - \cos \theta \left[ 1 + \left( 3r^2 / 2d^2 \right) (\sin 2\theta / 4)^2 \right] \right\} / 2. \quad (4.4.14)$$

Чтобы получить правильные результаты с помощью этих формул, необходимо учесть возможные искажения электрического поля вблизи окна детектора и возможность прохождения электроном в рабочем теле детектора некоторого минимального отрезка пути для появления электрического сигнала. Оба эти фактора учитываются при определении угла  $\theta$ : в расчете берут не истинное окно детектора, а его сечение, отстоящее на 4–5 мм от окна.

При определении коэффициента  $f_i$  нужно учитывать не только поглощение, но и рассеяние  $\beta$  – частиц в источнике. Эти два фактора действуют в противоположных направлениях: поглощение в источнике уменьшает число отсчетов радиометра, а рассеяние электронов увеличивает число отсчетов, поскольку рассеиваются, в основном, электроны, летящие вдоль слоя. В тонких слоях эффект рассеяния компенсирует или может даже превышать эффект поглощения, однако с увеличением толщины источника поглощение становится доминирующим. Величина  $f_i$  зависит от толщины источника, энергии  $\beta$  – частиц и атомного номера вещества источника  $Z$ . Для веществ со средним значением  $Z$  и толщины источника порядка 1/20 величины пробега коэффициент  $f_i$  оказывается очень близким к единице. В других случаях значение коэффициента  $f_i$  находят экспериментально, путем изготовления источников разной толщины и экстраполируя измеряемые удельные скорости счета радиометра, то есть скорости счета, отнесенные к массовой толщине слоя (в мг/см<sup>2</sup>), к нулевой толщине. Однако из-за немонотонного характера зависимости  $f_i$  от толщины слоя надежность этой процедуры не очень высока и возникающие погрешности могут достигать 20 % вносимой поправки.

Коэффициент  $f_i$ , равный отношению количества регистрируемых импульсов при наличии подложки и без нее, может иметь значения от 1 до 2, в зависимости от толщины и атомного номера материала подложки. Его значение проще всего определить экспериментально, меняя материал подложки и ее толщину. Использование толстых подложек из тяжелых материалов может привести к увеличению скорости счета на 50–60 %, тогда как применение материалов с малым значением атомного номера при толщине подложки меньше 1/5 пробега электрона с максимальной энергией приводит к гораздо меньшим поправкам, поэтому предпочтительнее. Исходя из этих соображений, источник не следует класть на дно защитного контейнера, а располагать его на расстоянии нескольких сантиметров от стенки свинцовой защиты. Рассеяние электронов от дна и стенок защитного контейнера можно свести к пренебрежимо малой величине, если покрыть детали свинцового контейнера слоем низкоатомного вещества, например, алюминия или пластика.

Величину поправочного коэффициента  $f_o$  в формуле 4.4.12, находят также экспериментально: между источником и детектором помещают алюминиевые фольги различной толщины (алюминий, слюда и воздух имеют близкие по величине значения массовых коэффициентов поглощения  $\beta$  – частиц), измеряют зависимость числа отсчетов счетчика от общей массовой толщины материала, а затем экстраполируют полученные результаты к нулевой толщине. Величина  $f_o$  очень сильно зависит от энергии  $\beta$  – частиц. Так окно, изготовленное из слюды толщиной 3 мг/см<sup>2</sup>, поглощает около 7 % частиц при максимальной энергии  $\beta$  – спектра 1 МэВ и 30 % – при энергии 300 кэВ. Если поправка на поглощение оказывается очень большой, то определение значений  $f_o$  методом экстраполяции оказывается ненадежным. Рассеяние в воздухе при расстояниях между источником и

детектором порядка нескольких сантиметров и при малой энергии  $\beta$ -частиц может увеличивать число отсчетов до 5%. Соответствующую поправку можно найти, откачивая воздух из объема защитного контейнера или изменяя расстояние между источником и детектором.

Типичное значение  $\varepsilon$  при регистрации  $\beta$ -частиц в геометрии с малым телесным углом с учетом всех поправок составляет величину порядка 0,03. Из-за большого числа поправок, многие из которых находят с недостаточно высокой точностью, суммарная погрешность получается достаточно большой, достигая 10%, и лишь в отдельных наиболее благоприятных случаях ее удается снизить до 2–3%. Поэтому метод малого телесного угла чаще используется для относительных измерений активности  $\beta$ -источников путем сравнения активности образцового источника с измеряемым.

Для абсолютных измерений активности  $\beta$ -источников наиболее эффективен метод  $4\pi$ -геометрии. Этот метод позволяет исключить необходимость внесения большинства трудно определяемых поправок.  $4\pi$ -геометрия реализуется расположением  $\beta$ -источника между двумя (или более) пропорциональными, сцинтилляционными и другими детекторами, чувствительные объемы которых стягивают практически  $4\pi$  телесный угол относительно источника. Источник и подложка, на которую он нанесен, должны быть достаточно тонкими, чтобы поправочные коэффициенты  $f_i$  и  $f_r$  на поглощение  $\beta$ -частиц в них были невелики. Рассеяние  $\beta$ -частиц в материале источника и в подложке в  $4\pi$ - $\beta$ -детекторе не существенно. В этом методе нет необходимости определять геометрический фактор  $G$ , который примерно равен единице, а также находить коэффициент  $f_o$ . В результате формула для определения эффективности  $\varepsilon$  существенно упрощается:

$$\varepsilon = \varepsilon_d \cdot G \cdot f_i \cdot f_r, \quad (4.4.15)$$

а входящие в нее величины находятся гораздо проще и с большей точностью. В целом  $\varepsilon$  оказывается близкой к единице. Погрешности при определении активности связаны, в основном, со статистической неопределенностью в числе зарегистрированных импульсов, исключением фоновых отсчетов, поправками на «мертвое» время, а также с погрешностями при определении коэффициентов  $f_i$  и  $f_r$ . В целом погрешность можно снизить до 0,3–0,5%.

Если радиоактивное вещество находится в газовой фазе, например в воздухе, или в виде газообразного химического соединения, то его активность легко измерить, введя этот газ прямо в рабочее тело газового ионизационного детектора, например, в ионизационную камеру или в пропорциональный счетчик. Таким методом измеряют, в частности, концентрацию радиоактивного изотопа углерода  $^{14}_6\text{C}$  в углекислом газе. Аналогичный прием используют в дозиметрии для непрерывного контроля содержания радиоактивных веществ в воздухе производственных помещений. Особенно эффективно этот метод применяется для регистрации  $\beta$ -излучения с низкой энергией. Типичным излучателем  $\beta$ -частиц малой энергии является тритий, у которого верхняя граница  $\beta$ -спектра составляет 18,5 кэВ. Этой энергии соответствует пробег электронов, равный всего лишь  $0,7 \text{ мг/см}^2$ , тогда как толщина окна стандартного  $\beta$ -счетчика 2–3  $\text{мг/см}^2$ . Очевидно, что  $\beta$ -частицы столь малой энергии можно регистрировать только при условии введения  $\beta$ -активного вещества в рабочий объем камеры или счетчика, в частности – проточного пропорционального счетчика. Но тогда без особых проблем весь пробег электронов укладывается в объеме счетчика, что позволяет измерить энергию  $\beta$ -частиц по значению амплитуд электрических импульсов.

При введении  $\beta$ -активного вещества в газовую среду детектора можно считать, что в уравнении 4.4.12. все коэффициенты равны единице, кроме поправочных множителей на величину эффективного рабочего объема детектора и на стеночный эффект. Если  $\beta$ -активное вещество вводится в виде раствора в жидкий сцинтиллятор, то эти множители обращаются в единицу. Но тогда появляются поправки на просчеты сигналов от электронов малых энергий и на адсорбцию введенного вещества на стенках детектора. Адсорбцию можно существенно

снизить сильным разбавлением вводимого вещества растворителем. В целом погрешность подобных измерений оказывается порядка 1–2 %.

Если  $\beta$  – распад сопровождается испусканием фотонов  $\gamma$  – излучения, то для измерения  $\beta$  – активности источника можно использовать метод  $\beta$  –  $\gamma$  – совпадений.  $\beta$  – распад удобен, если он идет по двум ветвям с разной интенсивностью, причем в одной ветви присутствует  $\gamma$  – распад. Если принять, что относительные квантовые выходы ветвей  $\beta_1$  и  $\beta_2$  равны, соответственно,  $w_1$  и  $w_2$  ( $w_1 + w_2 = 1$ ), то:

$$a_{\beta} = (w_1 \cdot \varepsilon_{\beta 1} + w_2 \cdot \varepsilon_{\beta 2}) A, \quad (4.4.16)$$

где  $A$  – искомая активность,  $\varepsilon_{\beta 1}, \varepsilon_{\beta 2}$  соответствующие эффективности регистрации частиц детектором.

$$a_{\gamma} = w_2 \cdot \varepsilon_{\gamma} \cdot A; \quad (4.4.17)$$

и

$$a_{\beta\gamma} = w_2 \cdot \varepsilon_{\beta 2} \cdot \varepsilon_{\gamma} \cdot A. \quad (4.4.18)$$

Тогда:

$$a_{\beta} \cdot a_{\gamma} / a_{\beta\gamma} = \left( w_1 \varepsilon_{\beta 1} / \varepsilon_{\beta 2} + w_2 \right) \cdot A. \quad (4.4.19)$$

При оценке абсолютных эффективностей  $\varepsilon_{\beta 1}$  и  $\varepsilon_{\beta 2}$  могут возникнуть существенные погрешности. Поэтому целесообразно применять для регистрации  $\beta$  – частиц  $4\pi$  – детектор. В этом случае  $\varepsilon_{\beta 1} = \varepsilon_{\beta 2} = 1$  и формула 4.4.19 превращается в более простую:

$$A = a_{\beta} \cdot a_{\gamma} / a_{\beta\gamma}. \quad (4.4.20)$$

Аналогичным образом можно рассчитать поправки и для других схем распада, а также поправки на конечные размеры источника, причем, всегда применение  $4\pi$  – детектора для регистрации  $\beta$  – частиц позволяет получить наиболее простую расчетную формулу и наиболее достоверные результаты. Общая погрешность при измерении активности бета-источников методом  $4\pi$  –  $\beta$  –  $\gamma$  – совпадений составляет 0,2–0,5 %.

#### **NS4.4.2 Детектирование альфа – частиц, спектрометрия альфа – излучения**

Поскольку пробег  $\alpha$  – частиц в твердых веществах измеряется микрометрами, образцы  $\alpha$  – активных веществ для абсолютных измерений следует изготавливать в виде очень тонких слоев или пленок, иначе поправки на самопоглощение частиц в источнике и связанные с их введением погрешности будут слишком велики. По этой же причине между источником и рабочим телом детектора не должно быть толстых перегородок или стенок. Лучше всего, если это возможно, ввести источник непосредственно в рабочее тело детектора.

Абсолютные измерения активности  $\alpha$  – активных источников производят с малыми телесными углами. Наиболее удобные детекторы при подобных измерениях – ионизационные камеры и счетчики с тонкими окнами, сцинтилляционные счетчики на основе сернистого цинка, а также кремниевые поверхностно-барьерные полупроводниковые детекторы. Широкое распространение получил ZnS, активированный серебром, световой выход которого в 3 раза превышает аналогичный параметр NaI(Tl). Основной недостаток ZnS(Ag) заключается в том, что его невозможно выращивать в виде монокристаллов больших размеров. Поэтому его применяют в виде мелкокристаллического порошка, толщина слоя которого, нанесенного на стеклянную подложку, должна быть порядка пробега  $\alpha$  – частиц в этом веществе, то есть около  $8 \text{ мг/см}^2$  при энергии  $\alpha$  – частиц  $E_{\alpha} = 5,1 \text{ МэВ}$ . Другой недостаток детектора состоит в том, что энергетическое разрешение у него хуже, чем у кристалла NaI(Tl), поскольку мелкокристаллический порошок пропускает лишь часть светового потока сцинтилляции на фотокатод ФЭУ. Зато по весьма низкому уровню фона детекторы с ZnS(Ag) имеют

преимущества даже перед газовыми ионизационными детекторами. Так, использование слоя ZnS(Ag) диаметром около 5 см позволяет довести фон до 0,3 отсчетов за 1 час. Обычно ZnS(Ag) применяют в счетных радиометрах (например, дозиметрических) в условиях, когда  $\alpha$  – активный источник можно подвести прямо к сцинтиллирующему слою, который нанесен непосредственно на поверхность входного окна фотоумножителя. При таких условиях геометрический фактор достигает значений 0,3–0,4. Несмотря на то, что по сравнению с рассматриваемыми ниже измерениями в  $2\pi$  – геометрии, метод малого телесного угла требует введения большого числа поправок, в стационарных условиях точность измерений может быть доведена до десятых долей процента.

Если тонкий слой  $\alpha$  – активного вещества нанесен на положительно заряженный электрод ионизационной камеры в виде небольшого пятна, наикратчайшее расстояние от которого до края электрода больше пробега  $\alpha$  – частицы в газе, наполняющем камеру, то можно считать, что выполняются условия  $2\pi$  – геометрии и  $G=0,5$ . Давление газовой смеси и расстояние между электродами камеры таковы, что  $\alpha$  – частицы не достигают поверхности противоположного электрода, то стеночный эффект, заключающийся в неполной передаче кинетической энергии  $\alpha$  – частиц газовому объему при его прохождении, отсутствует. Тогда эффективность регистрации частицы  $\varepsilon_d$  равна единице. При этом для получения значения  $\varepsilon$  остается определить лишь поправочные коэффициенты  $f$ , учитывающие самопоглощение частиц в источнике и обратное рассеяние  $\alpha$  – частиц от подложки. Коэффициент самопоглощения в источнике  $f_i$  можно определить следующим образом. Пусть  $s$  – толщина слоя  $\alpha$  – активного вещества, образующего источник,  $R$  – пробег  $\alpha$  – частиц в веществе источника. Тогда из слоя  $dx$ , находящегося на глубине  $x$  в источнике, могут попасть в рабочий объем камеры и вызвать в ней электрический импульс только те частицы, которые вылетели из поверхности источника под углами к нормали от  $0^\circ$  до некоторого предельного угла  $\theta_{пред}(x)$ , при котором величина пробега частиц в веществе источника  $y = p \cdot R$ . Здесь  $p$  – максимальная доля пробега частиц в веществе источника, при которой остаточный пробег в рабочем газе ионизационной камеры достаточен для их надежной регистрации. Доля частиц, попадающих в рабочий газ из слоя  $dx$ , определяется отношением телесного угла  $\Omega_{пред}$ , соответствующего  $\theta_{пред}(x)$ , к  $2\pi$ :

$$f_i(x) = \frac{\Omega_{пред}}{2\pi} = \int_0^{\theta_{пред}} \sin \theta \cdot d\theta = 1 - \cos \theta_{пред}(x), \quad (4.4.21)$$

и поскольку:

$$\cos \theta_{пред}(x) = \frac{x}{pR}, \quad (4.4.22)$$

то:

$$f_i(x) = 1 - \frac{x}{pR}. \quad (4.4.23)$$

Очевидно, что имеет смысл применять источники с толщиной активного слоя  $s < pR$ , поскольку слои активного вещества, лежащие на глубинах  $x > pR$ , не будут использованы в этом способе радиометрии. При этом общая доля частиц, регистрируемых детектором (из числа частиц, вылетающих в пределах телесного угла  $\pi$ ):

$$f_i = \int_0^s f_i(x) \frac{1}{s} dx = 1 - \frac{s}{2pR}. \quad (4.1.24)$$

Предельные случаи:

- 1) очень тонкий источник  $\left( \frac{s}{pR} \ll 1 \right)$ :  $f_i \approx 1$ ;

2) толстый источник  $\left(\frac{s}{pR} \approx 1\right)$ :  $f_i \approx 0,5$ .

Коэффициент обратного рассеяния  $f_r$  равен единице плюс вероятность того, что частица, вылетевшая первоначально в сторону подложки, в результате рассеяния изменит направление движения, попадет в рабочий газ детектора и будет зарегистрирована. Заметим, что самопоглощение в источнике снижает число отсчетов детектора, а обратное рассеяние – увеличивает ее, поэтому  $f_i < 1$ , а  $f_r > 1$ . Для  $\alpha$  – частиц коэффициент обратного рассеяния мало отличается от единицы из-за малой вероятности их рассеяния на заметные углы, но при очень точных измерениях этим отличием нельзя пренебрегать. Значение  $f_r$  проще всего оценить экспериментально, исследуя зависимость скорости счета от толщины накладываемого на источник поглотителя в виде, например, алюминиевой фольги. Число прошедших через поглотитель частиц линейно уменьшается с увеличением его толщины  $s_p$ . Действительно, если отсчитывать глубину слоя  $x'$  от внешней поверхности поглотителя ( $x' = s_p + x$ ) и для простоты считать, что пробеги  $\alpha$  – частиц в веществах источника и поглотителя одинаковы, то приведенные выше соотношения заменяются на следующие:

$$f'_i(x') = \frac{x'}{pR} \quad (4.4.25)$$

и

$$f'_i = \int_{s_p}^{s_p+s} f'_i(x') \frac{dx}{s} = f_i - \frac{s_p}{pR}. \quad (4.4.26)$$

Согласно уравнению 4.4.26, при изменении  $s_p$  от 0 до  $pR$  величина  $f'_i$ , а вместе с ней и число отсчетов радиометра, линейно уменьшаются от своего максимального значения до нуля. Очевидно, что в силу крайне малой вероятности рассеяния  $\alpha$  – частиц на большие углы обратное рассеяние может практически наблюдаться для частиц, летящих параллельно поверхности источника. Такие частицы будут поглощаться самыми тонкими слоями поглотителя, а частицы, прошедшие более толстые слои, будут частицами, не испытавшими обратного рассеяния. Поэтому при малых толщинах поглотителей наблюдаются отклонения от линейной зависимости счета от толщины поглотителя. Производя линейную экстраполяцию прямолинейного участка экспериментальных зависимостей к нулевой толщине поглотителя и беря отношение действительной скорости счета при нулевой толщине к экстраполированному значению, легко получить  $f_r$ . Следует отметить, что  $f_r$  зависит не только от типа материала, но и от качества его обработки.

Поправки на обратное рассеяние полностью исключаются в  $4\pi$  – геометрии. Однако трудности, связанные с необходимостью изготовления для таких измерений очень тонких источников на столь же тонких подложках, приводят к тому, что этот метод применяется очень редко для определения активности альфа-источников. После того, как коэффициенты  $f_i$  и  $f_r$  определены, активность  $\alpha$  – источника можно определить по числу регистрируемых за одну секунду импульсов детектора  $a$  по формуле:

$$A = \frac{2a}{f_r \cdot f_i}. \quad (4.4.27)$$

В эту формулу следует ввести поправки на просчеты в счетчике импульсов и в регистрирующей аппаратуре. Но здесь считается, что эти поправки, общие для всех видов измерений со счетчиками и камерами, вводятся наряду с исключением фона на первых этапах обработки экспериментальных данных, а под величиной  $a$  везде понимают уже экспериментальный результат с учтенными поправками. Результирующая погрешность при

измерении активности альфа-источников ионизационными камерами и пропорциональными счетчиками с твердыми слоями источника определяется статистическим разбросом числа зарегистрированных импульсов, неточностью фиксации времени измерения, погрешностями учета фона и мертвого времени счетчика, а также погрешностями при определении поправочных коэффициентов  $f_i$  и  $f_r$ . Как показывает анализ, общую погрешность метода можно довести до 0,3–0,5 %.

Необходимость введения исследуемого источника в рабочий объем ионизационной камеры или счетчика приводит к тому, что всякий раз приходится иметь дело с трудоемкой операцией перенаполнения детектора высококачественной газовой смесью. Трудности, связанные с этой операцией, сводятся к минимуму в так называемых проточных пропорциональных счетчиках, в которых необходимая чистота газа обеспечивается не высокой герметичностью и тщательной предварительной очисткой, обезгаживанием рабочего объема, а непрерывной подачей чистой газовой смеси во время проведения измерений. После введения препарата счетчик закрывают и быстро продувают рабочим газом, а затем газ подают в него с небольшим расходом. Давление в счетчике поддерживают немного выше атмосферного, поэтому наличие небольших течей не сказывается на его работе. Чувствительность проточного пропорционального счетчика определяется скоростью счета фоновых импульсов и ее можно довести до величины 0,1 имп./мин.

В некоторых случаях описываемый метод используют для интегральных измерений, когда регистрируют не отдельные импульсы от одиночных  $\alpha$  – частиц, а суммарный ионизационный ток между электродами камеры. При этом, чтобы определить активность, необходимо знать число пар ионов  $n_i$ , создаваемых каждой  $\alpha$  – частицей. В первом приближении:

$$n_i = E_\alpha / \omega, \quad (4.4.28)$$

где  $\omega$  – энергия, расходуемая на образование одной пары ионов при первичной ионизации рабочего газа детектора.

Расчет коэффициентов  $f_i$  и  $f_r$  оказывается несколько сложнее, поскольку опять приходится оценивать число пар ионов, создаваемых частицей на участках остаточного пробега в газе камеры или счетчика. Окончательно измеряемый камерой ток:

$$I = e \cdot E_\alpha \cdot f_i \cdot f_r \cdot A / \omega. \quad (4.4.29)$$

В это соотношение должны быть внесены дополнительные поправки на рекомбинацию ионов и на токи утечки. Токи утечки являются основным фактором, ограничивающим чувствительность метода. При попадании в камеру за 1 мин одной  $\alpha$  – частицы с энергией около 4 МэВ возникает ток около  $3 \cdot 10^{-16}$  А, который вполне можно зарегистрировать современными электрометрическими устройствами, однако, токи утечки в камерах бывают того же порядка, поэтому менее интенсивные источники измерять интегральным методом весьма трудно.

Если альфа-активное вещество – газ или входит в состав газообразного химического соединения, то его можно непосредственно ввести в рабочий объем камеры или пропорционального счетчика. Раствором соли альфа-активного вещества можно пропитать эмульсию фотопластинки. Во всех подобных случаях вероятность регистрации акта распада в первом приближении не зависит от направления вылета  $\alpha$  – частицы, поэтому геометрический фактор  $G=1$ . Можно считать, что и  $\varepsilon_d = 1$ . Поправки на самопоглощение и на рассеяние от подложки вводить не требуется, зато существенное значение приобретает поправка на стеночный эффект. Точность измерения активности введенной в детектор порции альфа-активного вещества, помимо рассмотренных факторов, определяется также погрешностью в определении объема детектора, а в случае фотопластинок – еще и неопределенностью начала и конца экспозиции, поскольку раствор и проявитель пропитывают эмульсию медленно. В результате общая погрешность измерений оказывается значительной.

Исключение составляет разновидность метода, при которой альфа-активное вещество вводится в жидкий сцинтиллятор. Высокие пороги сцинтилляционных детекторов не являются

помехой, и погрешность измерений достигает 0,05%. Особенно эффективно этот метод применяется для исследования растворов с низкой удельной активностью.

### **Спектрометрия альфа-излучения**

Альфа-спектрометр – это прибор для измерения энергии альфа-частиц, испускаемых радиоактивными ядрами. В большинстве случаев альфа-спектрометры не измеряют энергию частиц, а сравнивают ее с уже изученным спектром. Существует два основных принципа действия прибора: изучение движения альфа-частиц в магнитном поле (магнитный альфа-спектрометр) и анализ ионизирующего действия излучения.

Магнитный альфа-спектрометр представляет собой вакуумный прибор, в котором испускаемые каким-либо источником альфа-частицы проходят через магнитное поле, перпендикулярное направлению их движения, отклоняясь под действием этого поля на различные углы. Величина угла зависит от того, какова величина энергии частиц. Траектории заряженных частиц, движущихся в однородном поперечном магнитном поле, представляют собой окружности. Зависимость радиуса окружности от импульса частицы позволяет производить их анализ по энергии, так как группы вылетевших из источника альфа-частиц, обладающих различной энергией, после прохождения через магнитное поле собираются (фокусируются) в разных местах коллектора (детектора). В качестве детекторов альфа-излучения в магнитных спектрометрах обычно применяются фотопластинки. Обработка результатов измерения производится путём счёта числа треков под микроскопом. Магнитные альфа-спектрометры обладают наилучшим разрешением в своем классе приборов (порядка десятка кэВ) однако громоздки (вес может составлять несколько тонн) и предназначены в основном для целей фундаментальных исследований (например, для анализа космического излучения).

В задачах безопасности, учета и контроля ядерных материалов используются альфа-спектрометры, основанные на использовании ионизирующего действия альфа-излучения. Спектрометрию  $\alpha$  – частиц, то есть измерение энергетического распределения (спектра) эффективно производят с помощью импульсных ионизационных камер и поверхностно-барьерных кремниевых полупроводниковых детекторов.

Энергия альфа-частиц, спонтанно возникающих в ходе распада ядерных материалов, обычно находится в диапазоне от 4 до 6 МэВ. Причем отличия в энергиях многих изотопов разных химических элементов могут быть невелики (10–20 кэВ). Так как это значение близко к пределам разрешения ионизационных детекторов (25–30 кэВ), то для альфа-спектрометрического анализа с их помощью обычно требуется радиохимическое отделение элементов друг от друга или селективное выделение элемента из смеси.

Так как альфа-частица относится к разряду тяжелых заряженных, то любая физическая среда между альфа-излучающим радионуклидом и активной частью детектора, а также излучающий материал будут эффективно поглощать и снижать энергию частиц. Снижение энергии альфа-частиц обычно приводит к возникновению низкоэнергетического «хвоста» в пиках их полного поглощения, получаемых с помощью многоканального анализатора импульсов (см. рис. 4.4.1). Этот эффект еще больше увеличивается при попадании в детектор частиц под острым углом, а также по причине их замедления тонким окном детектора. Появление низкоэнергетического «хвоста» приводит к значительному ухудшению энергетического разрешения. Поэтому при проведении альфа-спектрометрических измерений требуется:

- изготовление образцов минимально возможной толщины;
- образец должен располагаться внутри детектора (в случае ионизационной камеры) или на минимальном расстоянии от него (для систем с полупроводниковым детектором);
- внутренний объем камеры (в случае полупроводникового детектора) вакуумируется (рис. 4.4.2).

С помощью ионизационных камер получают приемлемое энергетическое разрешение, порядка 0,7 % для  $\alpha$  – частиц с энергией около 5 МэВ. Ширина монохроматической линии  $\alpha$  – частиц в ионизационных камерах с ионным собиранием обусловлена, в основном, статистическими флуктуациями в числе пар ионов и шумами усилителей. При работе камер с



электронным собиранием энергетическое разрешение зависит еще и от индукционного эффекта. Поэтому близкое к указанному выше энергетическому разрешению получают в камерах с ионным собиранием. Эти камеры имеют очень низкое разрешающее время, то есть они медленные. Загрузка таких камер должна быть не более 1–2 имп/с. Постоянная времени  $\tau = R \cdot C$  на выходе камер должна быть в несколько раз больше, чем время дрейфа ионов в рабочем объеме при движении к электродам. Это время в камерах с размерами порядка нескольких сантиметров составляет величину порядка 1 мс. Если при этом постоянная времени приблизительно 5 мс, то время спада импульса до 0,01 % от максимального значения составляет около 20 мс. Следовательно, при регистрации в среднем 1 имп/с вероятность их наложения составит примерно 2 %. При электронном собирании камеры оказываются способными регистрировать в среднем несколько сот импульсов в секунду с малой вероятностью наложения. Но в таких камерах необходимо предусматривать меры по снижению влияния индукционного эффекта, то есть устанавливать сетки в плоских камерах, или создавать в рабочем объеме неоднородное электрическое поле (цилиндрические или сферические камеры). Лучшее энергетическое разрешение получают в плоских камерах с сеткой.

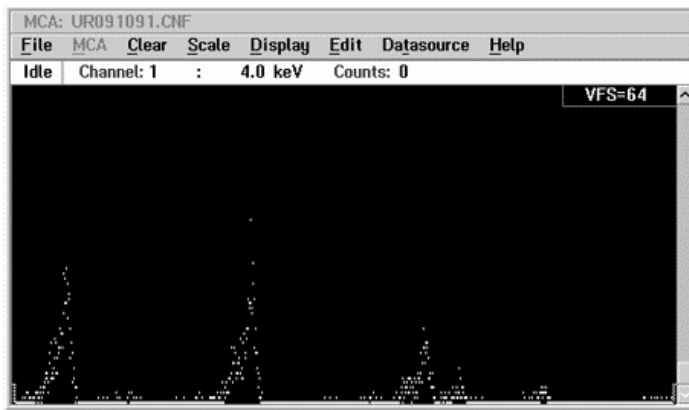


Рисунок 4.4.1. Пики спектра альфа-излучения с «хвостами» в области малых энергий

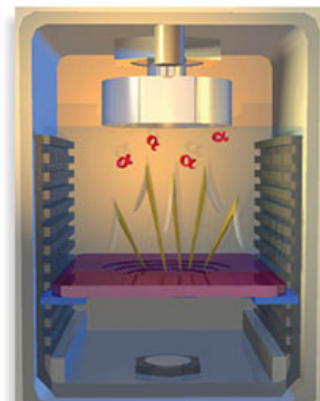


Рисунок 4.4.2. Вакуумная камера альфа-спектрометра с полупроводниковым детектором

На примере сферической камеры можно показать, как влияет индукционный эффект на энергетическое разрешение. Если предположить, что в камере равномерно по объему происходит первичная точечная ионизация заряженными частицами, а  $\alpha = \frac{r_2}{r_1}$  (отношение радиусов катода и анода камеры) и  $x = \frac{V}{V_{\max}}$  (отношение амплитуды электронного импульса к максимальному значению импульса при ионизации в точках  $r = r_2$ ). Тогда:

$$x = \frac{\alpha \cdot \left( \frac{r}{r_1} - 1 \right)}{(\alpha - 1) \cdot \frac{r}{r_1}}. \quad (4.4.30)$$

Распределение импульсов по амплитудам  $f(x)$  связано с распределением ионизации в камере:

$$f(x) \cdot dx = 3 \frac{r^2 dr}{r_2^3}. \quad (4.4.31)$$

Учитывая связь между  $x$  и  $r$ , определяется распределение  $f(x)$ :

$$f(x) = \frac{3(\alpha - 1)}{[\alpha - x(\alpha - 1)]^4}. \quad (4.4.32)$$

Ширина распределения  $f(x)$  на половине его высоты позволяет вычислить влияние индукционного эффекта на энергетическое разрешение:

$$\frac{\Delta V}{V} = \frac{\sqrt[4]{2} - 1}{\alpha - 1} \approx 0,2 \cdot \frac{1}{\frac{r_2}{r_1} - 1}, \quad (4.4.33)$$

Согласно соотношению 4.4.33 влиянием индукционного эффекта на энергетическое разрешение в сравнении с флуктуацией числа пар ионов можно пренебречь, если отношение  $\frac{r_2}{r_1} \geq 30$ .

Определение альфа-радионуклидов с помощью ионизационных камер имеет ряд преимуществ, среди которых следует отметить следующие:

- высокая эффективность регистрации;
- применение измеряемых препаратов с большими площадями регистрации, что повышает чувствительность метода;
- достаточно высокое разрешение;
- возможность дезактивации при загрязнении внутренней поверхности камеры.

Все эти достоинства позволили применять метод определения активности альфа-нуклидов, в основном изотопов урана, тория, плутония, с помощью ионизационных камер. Недостатками при эксплуатации ионизационных камер являются:

- сложность конструкций ионизационных камер и высокие профессиональные требования к обслуживающему персоналу;
- высокая температурная зависимость и, как следствие, плохая стабильность регистрации сигналов альфа-излучения;
- использование в качестве детектора газовой смеси и требования к ее чистоте, давлению, герметизации и так далее.

Применение полупроводниковых альфа-детекторов упростило эксплуатацию альфа-спектрометров с ионизационными камерами и повысило производительность альфа-анализов. С золото-кремниевыми поверхностно-барьерными детекторами достигнуто энергетическое разрешение около 0,2 % для  $\alpha$ -частиц с энергией 6 МэВ. В этом случае энергетическое разрешение ограничено в основном тепловыми шумами полупроводника. Нижний предел измеряемых энергий определяется собственными шумами полупроводника и шумами измерительной аппаратуры. Этот предел составляет около 15 кэВ. Верхний предел измеряемых энергий ограничен глубиной чувствительного слоя. Для поверхностно-барьерных детекторов он составляет около 40 МэВ для  $\alpha$ -частиц и примерно 10 МэВ для протонов. Значительно большие энергии можно измерить в литий-дрейфовых полупроводниковых детекторах (до 200–300 МэВ для  $\alpha$ -частиц).

Характеристики полупроводникового альфа-спектрометра в основном определяются детектором. Для уменьшения эффекта, когда при близких расстояниях «проба-детектор» большое количество альфа-частиц взаимодействует с веществом детектора под острым углом, что приводит к ухудшению разрешающей способности, в альфа-спектрометре при измерении проб применяют коллиматоры и используют специальные полупроводниковые детекторы с чрезвычайно тонким входным окном – PIPS. PIPS технология позволяет изготавливать детекторы, которые имеют низкий собственный шум, высокие эффективность и энергетическое разрешение.

Достоинством альфа-спектрометра с полупроводниковыми детекторами является возможность применения десятков и более полупроводниковых детекторов в одной измерительной системе, что значительно повышает производительность анализов.

Для точного определения концентраций актинидов на фоновых уровнях методом альфа-спектрометрии высокого разрешения с использованием поверхностно-барьерных детекторов готовится чрезвычайно чистый препарат, который не содержит весовых количеств элементов матрицы, а также мешающих альфа-излучателей.

Результаты альфа-спектрометрического анализа могут зависеть от квалификации оператора. Применение персональных компьютеров в альфа-спектрометрах с разработанными пакетами программ обработки спектров позволяют автоматизировать процесс анализа проб на многоканальных альфа-спектрометрах, а также делать выбор интересующих областей энергий для каждого детектора с вычислением результатов.

Основными задачами полупроводниковой альфа-спектрометрии, решаемыми с помощью программного обеспечения, являются:

- количественный и качественный низкоуровневый нуклидный анализ;
- автоматическая калибровка энергии, отображение разрешения и эффективности;
- автоматическая компенсация окружающего фона при анализе низкого уровня содержания в препарате;
- автоматическая идентификация нуклидов и распечатка.

Для энергетической калибровки и количественного анализа альфа-спектрометров используются калибровочные образцы. Изотопный состав образцов должен быть известен, а активность оставаться постоянной и известной с высокой точностью.

В ходе измерений камера, а также детектор спектрометра могут получить поверхностное загрязнение частицами материала, которые вырываются с поверхности измеряемого образца. Энергия частиц может быть такой, что они становятся способны имплантироваться в поверхность и не удаляются при дезактивации неразрушающими методами. В качестве меры, предотвращающей такое загрязнение, внутри камеры располагают источник небольшого отрицательного напряжения, способствующий возвращению тяжелых частиц на поверхность измеряемого образца.

#### **NS4.5 Гамма-спектрометрический анализ**

Гамма-спектрометрия является одним из наиболее информативных методов неразрушающего анализа ядерных и радиоактивных материалов. Он также часто используется в разрушающем анализе на различных стадиях его проведения. Гамма-спектрометрия твердо удерживает позиции ведущего метода благодаря двум основным свойствам, реализуемым одновременно:

- возможности выполнения изотопного анализа образца, содержащего сложную смесь радионуклидов;
- возможность выполнения количественного определения активности и массы радиоизотопов в исследуемом образце.

Перечисленные преимущества гамма-спектрометрического анализа являются, с одной стороны, следствием специфических свойств гамма-излучения как такового, а именно:

- возникает при распаде абсолютного большинства известных радионуклидов;
- является характеристическим и обладает уникальными свойствами для каждого радионуклида;
- обладает дискретным спектром;
- обладает высокой проникающей способностью, что позволяет создавать системы измерения, расположенные на значительном удалении от источника излучения.

С другой стороны, существуют детекторы и системы, эффективно регистрирующие гамма-излучение и позволяющие анализировать его спектр.

Тем не менее, в проведении гамма-спектрометрического анализа существуют свои сложности, которые определяются спецификой используемой аппаратуры и измеряемых образцов. В частности, для выполнения анализов необходима специальная настройка оборудования – калибровки по энергии и эффективности.

#### **NS4.5.1 Калибровка по энергии и эффективности, измерения**

Основным источником информации о составе радионуклидов в измеряемых образцах являются аппаратурные спектры, косвенно отражающие первичные энергетические спектры

излучателей (см. раздел 4.2.5). Форма аппаратурного спектра в большой мере зависит от разрешающей способности, размеров и эффективного атомного номера детекторов, а также от вещественного состава, размеров проб и геометрии измерений. Положение фотопиков на энергетической шкале спектрометра, площадь фотопиков и ее изменение во времени характеризуют энергию, интенсивность  $\gamma$ -переходов и эффективные периоды полураспада изотопов. Совокупность этих сведений, данные о фотоэффективности и разрешении спектрометра, о схемах распада изотопов (см. раздел NS.PR2.2 курса «Основы ядерной физики») позволяют во многих случаях однозначно определить основной состав излучателей и их активность.

Связь между активностью  $i$ -го радиоизотопа и скоростью счета регистрирующей системы устанавливается с помощью выражения:

$$n_i = \varepsilon \xi_\gamma A_i, \quad (4.5.1)$$

где  $n_i$  – скорость счета прибора;

$\varepsilon$  – эффективность регистрации излучения  $i$ -го изотопа детектором;

$\xi_\gamma$  – выход излучения от  $i$ -го радиоизотопа, регистрируемого детектором;

$A_i$  – активность изотопа.

Как уже отмечалось в разделе 4.2.5, для анализа аппаратурных  $\gamma$ -спектров (определения  $n_i$ ) используются пики полного фотоэлектрического поглощения (фотопики). Регистрируемый в этих пиках сигнал по своей амплитуде пропорционален энергии фотона гамма-излучения. Для регистрации этого сигнала используется одна из схем, показанных на рис. 4.5.1, 4.5.2. Амплитуда импульса измеряется либо аналогово-цифровым преобразователем (АЦП) многоканального анализатора (МКА), либо одним или несколькими одноканальными анализаторами (ОКА). Независимо от реализуемой схемы, сигналу определенной амплитуды должна приписываться определенная энергия. Это может быть достигнуто путем энергетической калибровки измерительной системы. В случае использования одноканальной системы суть энергетической калибровки заключается в дискриминации сигналов с целью отбора импульсов с определенной амплитудой, которой соответствует интересующая экспериментатора энергией излучения. Для многоканальных систем энергетическая калибровка заключается в закреплении определенных измерительных каналов за сигналами определенной амплитуды. Таким образом, создается измерительная шкала (состоящая обычно из 8000–16000 каналов регистрации определенной ширины), в которой каждому измерительному каналу приписывается определенная энергия регистрируемого излучения. Диапазон измерения энергий шкалы может быть настроен с помощью системы усиления. В общем случае энергетическая градуировка используется не только для определения положения и ширины рассматриваемых энергетических областей анализа, но и шкалы разрешений для пиков полного фотоэлектрического поглощения.

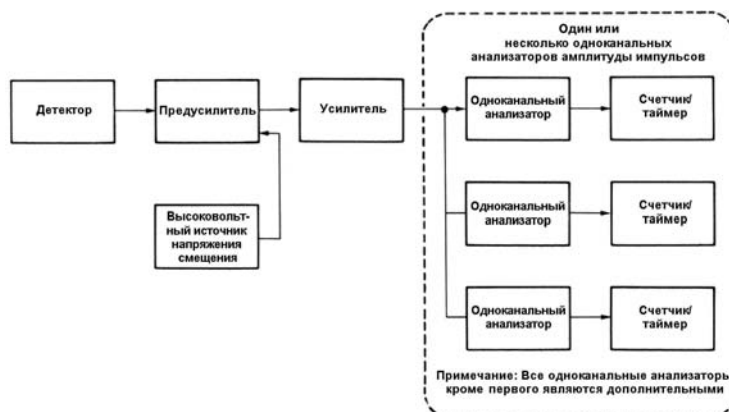


Рис. 4.5.1. Блок-схема гамма-спектрометрической системы, основанной на одноканальных анализаторах

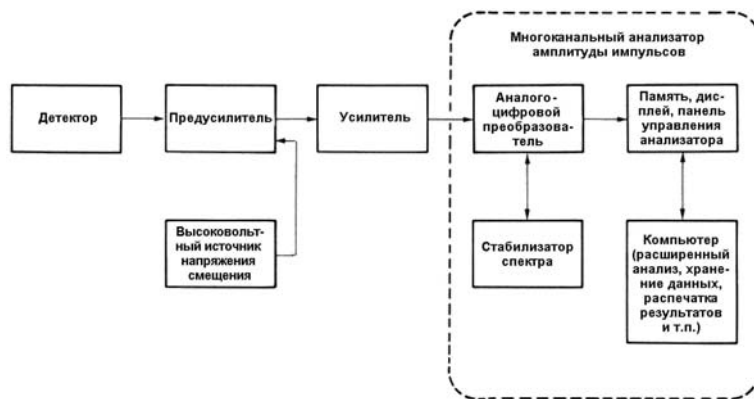


Рис. 4.5.2. Блок-схема гамма-спектрометрической системы на базе многоканального анализатора

### Энергетическая калибровка гамма-спектрометра

Энергетическая градуировка хорошей спектрометрической системы приблизительно линейна:

$$E = mx + b, \quad (4.5.2)$$

где  $E$  – энергия, потерянная фотоном гамма-излучения в детекторе;

$m$  – коэффициент наклона прямой;

$x$  – амплитуда выходного импульса;

$b$  – пересечение (смещение энергетической шкалы).

Предположение линейности обычно является достаточным для методик неразрушающего анализа. 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 (4.5.2) 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 многоканального анализатора.

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. Подобные внутренние градуировки возможны для многих нуклидов и ядерных материалов.

Когда измеряемые нуклиды или ядерные материалы не могут обеспечить требуемую внутреннюю градуировку, используются стандарты изотопов, которые испускают гамма-кванты известных энергий – калибровочных источников излучения. В табл. 4.5.1 приведен список часто используемых изотопов, а также значения их периодов полураспада и энергий их основных излучений. Идеальными для изготовления стандартов являются изотопы, имеющие только одну гамма-линию в спектре излучения (монохроматы). Однако таких радионуклидов, имеющих приемлемый период полураспада, очень мало. Большинство из приведенных в табл. 4.5.1 изотопов испускают несколько гамма-линий и применимы для детекторов как низкого, так и высокого разрешения. Калибровочные источники обычно изготавливаются в виде наборов закрытых источников излучения. Источники обычно содержат единственный изотоп и производятся в широком диапазоне форм и размеров. Типичные активности источников составляют от 0,1 до 100 мкКи. 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 электронных схем и расчета поправок потерь из-за высокой загрузки измерительного тракта.

Существуют также стандартные источники гамма-излучения с несколькими изотопами в одной капсуле. Такие многоэнергетические источники используются для определения характеристики энергетической градуировки и характеристики эффективности детекторов высокого разрешения.

Таблица 4.5.1. характеристики некоторых образцовых источников гамма-излучения\*

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

Уравнение (4.5.2) 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:

$$m = \frac{E_2 - E_1}{x_2 - x_1}, \quad (4.5.3)$$

$$b = \frac{x_2 E_1 - x_1 E_2}{x_2 - x_1}. \quad (4.5.4)$$

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:

$$m = \frac{n \sum x_i E_i - \sum x_i \sum E_i}{\Delta}, \quad (4.5.5)$$

$$b = \frac{\sum x_i^2 \sum E_i - \sum x_i \sum x_i E_i}{\Delta}, \quad (4.5.6)$$

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

Большинство современных систем с многоканальными анализаторами имеют управляющее программное обеспечение, позволяющее производить калибровку по энергии в автоматическом режиме, самостоятельно вычисляя все необходимые коэффициенты по выбранному алгоритму.

В большей части рабочего энергетического диапазона положения пиков могут быть определены с погрешностью  $\sim 0,1$  канала ( $\sim 0,01$  кэВ).

#### **Эффективность детектирующей системы**

Согласно выражению 4.5.1 для определения активности  $A_i$  определяемого изотопа в образце необходимо знать еще одну экспериментальную характеристику – эффективность детектирующей системы ( $\varepsilon$ ). В связи с тем, что скорость счета определяется как количество зарегистрированных импульсов в пике полного поглощения фотоэлектронов ко времени измерения (набора) данного пика спектрометрической системой:

$$n_i = \frac{S}{T}, \quad (4.5.7)$$

то эффективность детектирующей системы может быть представлена эффективностью регистрации этого пика. Абсолютная эффективность регистрации пика полного поглощения представляет собой долю гамма-квантов, зарегистрированных в пике полного поглощения, от потока гамма-квантов, испущенных точечным источником в заданных условиях измерений (геометрии, материалов и так далее). Эта эффективность определяется в виде функции от энергии:

$$\varepsilon = \frac{\text{полное число зарегистрированных фотонов в пике полного поглощения}}{\text{полное число фотонов, испущенных источником}} \quad (4.5.8)$$

Полная эффективность регистрации фотонов может быть выражена в виде произведения четырех коэффициентов:

$$\varepsilon_{\text{полн.}} = \varepsilon_{\text{геом.}} \cdot \varepsilon_{\text{погл.}} \cdot \varepsilon_{\text{обр.}} \cdot \varepsilon_{\text{собст.}} \quad (4.5.9)$$

Геометрическая эффективность  $\varepsilon_{\text{геом.}}$  представляет собой долю испущенных фотонов, которые достигают детектора (попадают в него). В простейшем случае, для точечного источника, эта доля определяется с помощью выражения:

$$\varepsilon_{\text{геом.}} = A/(4\pi r^2), \quad (4.5.10)$$

где  $A$  – площадь поперечного сечения детектора;

$r$  – расстояние между источником и детектором.

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.

Теоретическое определение  $\varepsilon_{geom.}$  становится тем сложнее, чем сложнее геометрия, описывающая взаимное положение измеряемого образца и детектора, а также самого измеряемого образца. Для большинства нетривиальных геометрий расчетное определение  $\varepsilon_{geom.}$  может быть выполнено только с помощью численных методов решения переноса излучения, например, методом Монте-Карло.

*Эффективность поглощения*  $\varepsilon_{полг.}$  учитывает влияние промежуточных материалов (таких как корпус детектора, специальные поглотители и тому подобные), которые поглощают часть входящего излучения перед тем, как оно провзаимодействует с детектором. Учет этого коэффициента особенно важен для низкоэнергетических фотонов, для которых эффекты поглощения наиболее выражены. Простейшая математическая интерпретация этого коэффициента имеет вид:

$$\varepsilon = \exp\left[-\sum \mu_i(E_\gamma)\rho_i x_i\right], \quad (4.5.11)$$

где  $\mu_i$  – массовый коэффициент поглощения  $i$ -го промежуточного материала;

$\rho_i$  – плотность  $i$ -го промежуточного материала;

$x_i$  – толщина  $i$ -го промежуточного материала.

Суммирование проводится по всем типам промежуточных материалов.

*Эффективность образца*  $\varepsilon_{обр.}$  представляет собой обратную величину поправки на самопоглощение в образце. Это доля испущенных гамма-квантов, которые покидают материал образца. Например, в пластине толщиной  $x$  и с коэффициентом пропускания  $T$ , равным  $\exp[-(\mu\rho x)]$ , эффективность образца равна:

$$\varepsilon_{обр.} = \frac{1 - \exp[-(\mu\rho x)]}{(-\mu\rho x)} = \frac{T - 1}{\ln T}. \quad (4.5.12)$$

Этот коэффициент зависит от состава каждого излучающего образца и его геометрии и также очень сложен для вычисления теоретическими методами.

*Собственная эффективность*  $\varepsilon_{собст.}$  представляет собой вероятность того, что гамма-квант, который попадает в детектор, провзаимодействует и даст импульс в пик полного поглощения. Простейшая математическая интерпретация этого коэффициента имеет вид:

$$\varepsilon_{собст.} = 1 - \exp(-\mu\rho x), \quad (4.5.13)$$

где  $\mu$  – фотоэлектрический массовый коэффициент ослабления;

$\rho$  – 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,  $\varepsilon_{собст.}$  является также слабой функцией  $r$ , вследствие регистрации гамма-квантов,двигающихся не по оси симметрии детектора.

Часто используемым термином является относительная эффективность, которая имеет два значения:

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

$$\varepsilon_{собст.}(Ge) = 100\varepsilon_{полн.}(Ge, 1332 \text{ кэВ}) / \varepsilon_{полн.}(NaI, 1332 \text{ кэВ}). \quad (4.5.14)$$

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



- кривая относительной эффективности: (также называется градуировкой по эффективности). Это составная кривая зависимости отношения зарегистрированной скорости счета к испущенной скорости счета от энергии представляется выражением:

$$\varepsilon_{\text{отн.}} = N \cdot \varepsilon_{\text{полг.}} \cdot \varepsilon_{\text{обр.}} \cdot \varepsilon_{\text{собст.}} \quad (4.5.15)$$

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  $\varepsilon_{\text{обр.}}$  и, таким образом, должна определяться для каждого измеряемого образца.

Полная относительная эффективность может быть вычислена полутеоретически или, что является более практичным, измерена с использованием образцовых источников гамма-излучения.

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,  $\varepsilon_{\text{собст.}}$  при высоких энергиях и  $\varepsilon_{\text{полг.}}$  – при более низких энергиях. Геометрический коэффициент  $\varepsilon_{\text{геом.}}$  определяет предельную амплитуду эффективности. Собственная эффективность и эффективность поглощения сильно зависят от энергии фотона, как показано на рис. 4.5.3 и 4.5.4. На рисунках представлена типичная энергетическая зависимость эффективности для планарного и коаксиального Ge(Li) детекторов, соответственно.

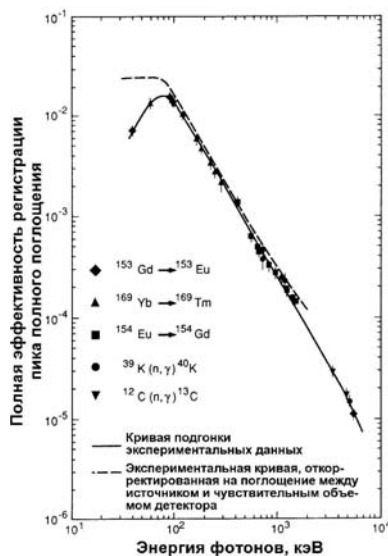


Рис. 4.5.3. Полная эффективность регистрации пика полного поглощения для точечного источника на расстоянии 54 мм от поверхности планарного детектора Ge(Li) диаметром 33 мм и толщиной 6,8 мм

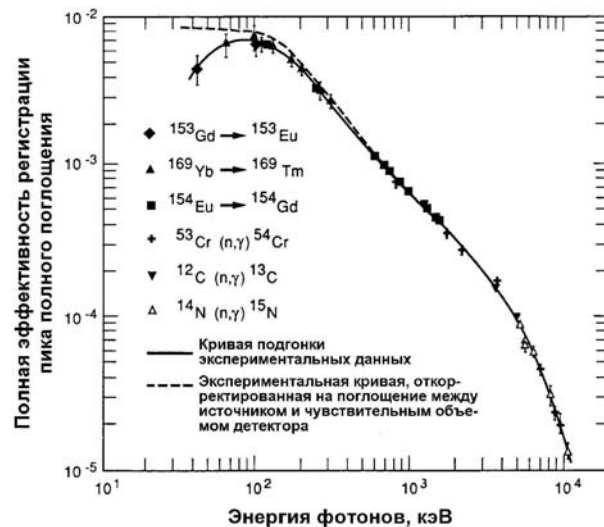


Рис. 4.5.4. Полная эффективность регистрации пика полного поглощения для точечного источника на расстоянии 83 мм от поверхности коаксиального детектора Ge(Li) объемом 38 см<sup>3</sup>

На основании данных, представленных на рис. 4.5.3 и 4.5.4 могут быть сделаны следующие выводы:

- 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 всегда учитывать поправку энергетически зависимой эффективности;

- при выполнении анализа низкоэнергетических гамма-квантов следует использовать детекторы малой толщины. Это позволяет оптимизировать эффективность регистрации в области низких энергий и снизить эффективность регистрации нежелательных высокоэнергетических гамма-квантов;
- при выполнении анализа гамма-квантов с высокими энергиями для обеспечения достаточной эффективности регистрации более проникающего излучения должны использоваться детекторы большой толщины. Кроме того, выбранные поглотители на входе детектора могут уменьшить вклад в скорость счета от нежелательного низкоэнергетического излучения.

Хотя на рис. 4.5.3 и 4.5.4 эти особенности проиллюстрированы в отношении 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.

### ***Измерения и получение количественных результатов***

Несмотря на кажущуюся простоту проведения гамма-спектрометрических анализов, получение с их помощью высокоточного результата, во многих случаях, является достаточно сложной задачей и требует настоящего исполнительского искусства от экспериментатора.

Основная проблема заключается в определении эффективности регистрации фотонов гамма-излучения. Суть проблемы заключается в том, что существует практически бесконечное разнообразие объектов измерения (образцов), их геометрии и геометрии их взаиморасположения с детектирующей системой, а, следовательно, составляющих поглощения в окружающей среде и самопоглощения для определения полной эффективности (см. соотношение 4.5.9). Поэтому абсолютный метод определения активности, основанный на ее определении из выражения 4.5.1 с использованием уравнения 4.5.7, может быть эффективно применен только в случае измерения точечных источников излучения. Под точечными источниками обычно понимаются источники, размеры которых являются пренебрежимо малыми с точки зрения необходимости учета самопоглощения и введения поправок на собственную геометрию образца. Абсолютно большая часть объектов измерения к точечным источникам не относится.

Существует подход к проведению анализов, позволяющий избежать проблем, связанных с определением эффективности. Он заключается в изготовлении или приобретении образцовых материалов, повторяющих в большей или меньшей степени измеряемый образец, или набора материалов, с помощью которого стандарт для измерений может быть изготовлен. С помощью образцового материала (стандарта) спектрометрическая система может быть откалибрована по эффективности в условиях, когда ее применение для анализа контролируемых образцов будет давать приемлемые результаты. При этом, если речь идет об анализе одного отдельного изотопа, содержащегося как в стандарте, так и в измеряемом образце, то определение его активности или массы может вестись с помощью простого сравнения площадей пиков полного поглощения фотоэлектронов какой-либо выбранной энергии (сравнительный метод анализа):

$$\frac{A_x}{A_o} = \frac{S_x}{S_o} = \frac{n_x}{n_o}, \quad (4.5.16)$$

где  $A_x$ ,  $S_x$  и  $n_x$  означают активность, площадь пика полного поглощения и скорость счета в области пика полного поглощения для анализируемого образца, а  $A_o$ ,  $S_o$  и  $n_o$  – для стандарта.

Необходимым условием анализа сравнительным методом является не только эквивалентность всех параметров измерений, но и активностей исследуемых образцов. Более правильным является использование для сравнительных анализов нескольких стандартов с различными значениями активностей. В этом случае рекомендуется строить калибровочный график. Значение активности неизвестного образца должно находиться внутри диапазона

активностей используемых стандартов. Преимуществом сравнительного метода является возможность использования одноканальных анализаторов или ограниченного диапазона измерения энергии, что может значительно сократить время проведения анализов.

Свои ограничения в возможность проведения гамма-спектрометрических анализов накладывает также аппаратура. Ограничения в ее использовании могут быть условно разделены на два типа. Первый тип связан с особенностями формирования и анализа спектра излучения (фоновым излучением, рассеянием, формированием ложных пиков и их интерференцией и тому подобное). Второй – с временным разрешением измерительных трактов. В частности, с величиной «мертвого» времени и контроля количества подсчетов.

Вследствие ограниченной разрешающей способности спектрометров и эффектов рассеяния  $\gamma$ -квантов в веществе пробы и детектора (особенно в сцинтилляционном детекторе) на спектрограммах не выделяются фотопики некоторых изотопов, присутствующих даже в значительных количествах. Это происходит, например, когда фотопик какого-либо изотопа находится в зоне максимума комптоновского распределения от другой интенсивной  $\gamma$ -линии. В некоторых случаях происходит обратная ситуация – на спектрограммах могут появляться дополнительные пики, вызванные различными физическими процессами в детекторе (см. раздел 4.5.2). Их появление осложняет проведение анализа изотопного состава образца.

Большие трудности могут возникнуть при идентификации радиоизотопного состава слабоактивных проб с соизмеримой активностью естественных и искусственных радиоизотопов. На спектрограммах таких проб фотопики исследуемых радионуклидов маскируются фотопиками естественных радиоизотопов и во многих случаях имеют неправильную форму или трудно различимы на уровне общего фона от естественного гамма-излучения.

При измерении объемных проб особенно резко проявляется эффект накопления импульсов в «мягкой» области спектра, соответствующей малым энергиям  $\gamma$ -квантов, за счет комптоновского рассеяния в самом материале источника. В результате фотопики располагаются на наклонной подставке и их максимумы смещаются в сторону малых энергий от истинного положения.

Использование сцинтилляционных детекторов для анализа проб сложного состава, несмотря на его высокую эффективность ограничено, так как достаточно сложно провести правильную идентификацию состава пробы, а значит определить количественные параметры содержания в ней радионуклидов. Основным преимуществом полупроводниковых детекторов является высокое энергетическое разрешение, что открывает широкие возможности для идентификации изотопного состава проб и их количественного анализа.

Вся получаемая при гамма-спектрометрии полезная информация сосредоточена в пиках полного поглощения. Погрешность результата измерения определяется числом отсчетов в пике и отношением пик/фон. Фон могут создавать посторонние пики, частично или полностью перекрывающиеся с измеряемым пиком, а также рассеянные кванты более высокоэнергетических излучений, образующие комптоновский континуум, на котором располагается измеряемый пик.

Погрешность полученного значения числа отсчетов в пике зависит от рационального выбора пика-носителя информации, параметров используемого спектрометра (разрешающей способности и эффективности), условий измерений (внешний фон, загрузка аппаратуры). Обычно стремятся так организовать эксперимент, чтобы эффект был сосредоточен в узком энергетическом интервале и измерялся на малом фоне. Для этого требуется:

- использовать пик, изолированный от других пиков и расположенный в высокоэнергетической части спектра, где фон от комптоновских рассеяний мал. Использование высокоэнергетического пика важно еще и потому, что такое излучение минимально ослабляется внутри исследуемого образца и окружающего его пространства;
- использовать аппаратуру высокого разрешения с Ge-детектором. Важное значение имеет и эффективность регистрации квантов в пике полного поглощения, от которой зависит скорость набора полезной информации. Следует отметить, что при увеличении объема детектора растет вероятность регистрации

квантов не только в результате фотоэффекта, но и в результате многократных процессов, ведущих к полной потере энергии в детекторе;

- организовать надлежащую защиту аппаратуры от внешнего излучения, что особенно важно при проведении измерений на реакторе или в хранилищах. Для защиты детекторов гамма-излучения применяют многослойную защиту Pb-Cd-Cu: свинец ослабляет жесткое излучение, но в результате образуются рентгеновские кванты, которые в свою очередь поглощаются кадмием и медью;
- обеспечить приемлемую загрузку измерительного тракта, чтобы не допустить уширения пиков. Для регулировки загрузки можно изменять ширину коллимационного отверстия в защите, пропускающего излучение в детектор. Кроме того, на пути излучения в детектор можно установить фильтры (Pb, Cd), поглощающие низкоэнергетическое излучение. Тогда доля высокоэнергетических квантов в общем потоке возрастет (а общий поток, как отмечалось, ограничен), что увеличит скорость набора полезной информации;
- если измеряемый пик находится в области низких энергий, не следует использовать детектор с большим объемом. Эффективность небольшого детектора будет достаточно велика для регистрации мягкого гамма-излучения, а фон, обусловленный комптоновским рассеянием высокоэнергетического излучения, будет существенно ниже, чем в большом детекторе.

Принципы и методы обработки пиков гамма-излучения, также как состав и принципы работы электронного оборудования гамма-спектрометрических систем, являются самостоятельными дисциплинами, которые и не вводят в содержание данного курса и могут быть изучены самостоятельно по материалам, имеющимся в перечне литературы.

Качество гамма-спектрометрических измерений определяется совокупностью параметров, к наиболее значимым из которых можно отнести:

- энергетическое разрешение;
- диапазон энергий регистрируемых квантов гамма-излучения;
- эффективность регистрации в пике полного поглощения;
- интегральная и дифференциальная нелинейность;
- пропускная способность спектрометрического тракта;
- временная стабильность;
- температурная стабильность.

Требуемые качества результатов измерений (точность, повторяемость, воспроизводимость) могут быть достигнуты только при надлежащей работе применяемой измерительной системы. Нестабильность показаний приборов может быть вызвана:

- изменениями фона;
- изменениями геометрии измерений;
- изменениями температуры и влажности;
- изменениями в электропитании приборов;
- "старением" элементов и блоков электроники;
- повреждениями детекторов;
- действиями оператора.

Подготовка к проведению измерений должна включать:

- аттестацию метода измерений – процесс, с помощью которого демонстрируют и доказывают способность метода давать корректные результаты;
- аттестацию лаборатории – получение сертификата на проведение определенного типа измерений;
- аттестацию оператора – проверка и подтверждение сотрудником достаточной квалификации для проведения определенных измерений. Полученные им результаты анализируют (на соответствие Гауссову распределению и другое) и сравнивают с данными, полученные уже аттестованными специалистами.

Для обеспечения качества измерений применяют комплекс мер контроля, предусматривающих непрерывные и периодические наблюдения за работой измерительных приборов с применением стандартных образцов и источников и оценку непостоянства

результатов и погрешностей отдельных измерений. Цели контроля – наблюдение за стабильностью процесса измерений и получение данных о погрешностях. Применяют следующие процедуры:

- калибровку аппаратуры для того, чтобы гарантировать точность (избежать смещений результатов) и оценить стандартные отклонения результатов калибровки. Калибровка связывает результаты проводимых измерений с национальной (международной) системой единиц, обеспечивая сопоставимость с первичными эталонами.
- частые проверки с использованием рабочих стандартных образцов или источников.
- независимые повторные измерения образцов для оценки случайных погрешностей анализов.
- межлабораторный обмен образцами (межлабораторные эксперименты), который подтверждает, что данные проводимых измерений согласуются с данными других лабораторий, в том числе применяющих другие методы и аппаратуру.

При гамма-спектрометрических измерениях контроль качества чаще всего осуществляют с помощью калибровочного источника. Контролируемыми параметрами являются положение вершины пика на шкале энергий и его полуширина. Доказательством нормальной работы спектрометра обычно считают совпадение результатов ряда контрольных измерений в пределах удвоенного среднеквадратического отклонения. При недопустимом смещении или уширении пика необходимо принять меры для исправления ситуации: перенастроить измерительную систему, проверить геометрию измерения и так далее.

Для облегчения работы операторов и повышения качества измерений широко применяется внутренний контроль измерений. Часто такой контроль выполняется с помощью специального программного обеспечения, которое является дополнительным пакетом к программе обработки результатов измерений и управления электронной аппаратурой. Использование таких программ позволяет автоматически контролировать качество каждого измерения, если процедура их проведения является рутинной (повторяющейся).

#### ***NS4.5.2 Идентификация изотопов***

Определение изотопного состава исследуемого образца является важнейшей процедурой, которая предшествует анализу активности радионуклидов. Для ее правильного выполнения необходимо выполнение как минимум трех последовательных этапов обработки спектра измерений:

- калибровка спектра по энергии;
- нахождение пиков полного фотопоглощения;
- определение центроиды (вершины) пиков полного фотопоглощения.

Принципы энергетической калибровки гамма-спектрометрических систем изложены в разделе 4.5.1. В данном разделе кратко рассмотрены основные принципы выполнения двух оставшихся процедур. Современные программы обработки гамма-спектров позволяют выполнять процедуры нахождения пиков и определения их центроиды в автоматическом режиме. Однако знание основных принципов выполнения этих процедур необходимо для правильной настройки и интерпретации получаемых результатов.

#### ***Нахождение пиков***

Необходимой процедурой анализа спектров является разбивка спектрального распределения на участки с явно фоновыми точками. Эти участки могут быть выделены различными способами, например визуальным осмотром спектров, либо путем выполнения чисто математических приемов. Последнее, конечно, предпочтительнее, если решается задача автоматизированного анализа спектров. Но для этого нужно, чтобы алгоритм разбиения спектра на участки и проведение базовой кривой фона были убедительными и надежными.

Массивы точек, принадлежащих фоновому распределению, расположены на участках гамма-спектра, где нет пиков. Поэтому возможно построение такого алгоритма обработки гамма-спектров, в котором сначала определяются явные интенсивные пики-синглеты (одиночные пики без наложений). Затем слева и справа от вершин этих пиков, обычно на

расстоянии 3 ширины пика на половине высоты (ПШПВ) устанавливают условные границы отсчетов, которые в первом приближении считают началом интервалов, принадлежащих фону. От найденных границ формируют массивы отсчетов. Определенные подобным образом массивы проверяют на принадлежность фоновому распределению. Это распределение не должно иметь резко выделяющихся членов. Выборки проводят по различным критериям.

Например, считается, что участок спектра принадлежит базовому распределению фона лишь в том случае, когда отсчеты во всех каналах участка подобны друг другу с точностью до статистических флуктуаций, что определяется с помощью величин:

$$\bar{y} = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n y_i, \quad \sigma^2 = \frac{1}{n-1} \sum_{i=1}^n (y_i - \bar{y})^2, \quad (4.5.17)$$

где  $\bar{y}$  – среднее значение отсчетов в группе  $n$  – каналов;  $\sigma^2$  – дисперсия.

Коэффициент  $Q = \sigma^2 / \bar{y}$  сравнивается с пороговым значением  $Q_0$ , и принадлежность участка базовому распределению фона определяется при выполнении условий неравенства:

$$n \sum_{i=1}^n (y_i - \bar{y})^2 \leq Q_0 (n-1) \sum_{i=1}^n y_i, \quad (4.5.18)$$

где  $Q = 1-2$ .

Участки спектра могут анализироваться последовательно, а количество каналов, входящих в их состав, выбирают из условия разрешения детектора. Наиболее оптимальным является размер участка 2,5–3 ПШПВ.

Математические приемы анализа базового распределения весьма разнообразны. В их число входят метод сглаживания скользящим средним, аппроксимации фонового распределения полиномами второй и третьей степени и критерий статистического подобия отсчетов в каналах спектра. Эффективным методом определения участков базового распределения является метод второй производной, который позволяет установить не только наличие пика в распределении, но и массив базового распределения (см. далее по тексту подраздела).

Необходимость тщательного математического анализа базового распределения фона обуславливается необходимостью надежного определения пиков и получения их более точных характеристик. Математический анализ базового распределения фона позволяет идентифицировать тот или иной участок спектра как участок, принадлежащий фону и не имеющий пиков; более точно определять левую и правую границы одиночных и слившихся пиков с возможно более точной их идентификацией; более надежно прогнозировать форму фонового распределения под пиками в зависимости от характера фонового распределения слева и справа от выявленного пика и от градиента фонового распределения. Последнее обстоятельство весьма важно, если обнаруженный пик находится на вершине комптоновского распределения или на его спаде. Неоднозначность в определении характеристик пика, в том числе положения его вершины и площади, могут быть значительными в зависимости от фонового распределения под пиком.

Поиск пиков – одна из первых процедур автоматического анализа спектров. Наличие слабых пиков, отсчеты в которых лишь немного превышают их статистическую погрешность, сложность идентификации слившихся пиков и определение для них границ составляют основные трудности при выявлении пиков. Существует много различных методов поиска пиков. В некоторых программах при обработке спектров используют предварительное сглаживание, в других обходятся без него, сглаживание приводит к потере пиков с малой статистикой и искажению исходного распределения. Методы, не требующие предварительного сглаживания, дают более объективную информацию. По применяемым математическим процедурам методы поиска пиков можно условно разбить на следующие группы: статистические, дифференцирования по первой – четвертой производным и интегральные корреляционные.

Примером статистических методов является поиск пиков по методу сравнения. В основе этого метода лежит поиск вершины пика в задаваемой группе каналов спектра. Отсчет в каждом канале сравнивается с отсчетами в соседних каналах. Считается, что пик с максимумом

в  $i$ -ом канале существует, если число отсчетов  $y_i$  в этом канале одновременно удовлетворяет двум следующим условиям:

$$y_i - k\sqrt{y_i} > y_{i-p}; \quad y_i - k\sqrt{y_i} > y_{i+p}, \quad (4.5.19)$$

где  $y_i, y_{i-p}, y_{i+p}$  – отсчеты в каналах, соответственно,  $x_i, x_{i-p}, x_{i+p}$ ;  $k$  и  $p$  – коэффициенты, которые подбираются эмпирически. Значения коэффициента  $k$  лежат в пределах от 1 до 3. При больших значениях  $k$  критерий максимума является жестким и пики, даже с относительно большой статистической значимостью, будут пропускаться. При малых значениях  $k$  может возникнуть иная ситуация – будут выявляться пики, которые являются случайными статистическими колебаниями фона. Коэффициент  $p$ , определяющий число каналов, находящихся в районе  $i$ -го канала, должен быть соразмерен разрешению детектора. В некоторых случаях его принимают  $p=2$ .

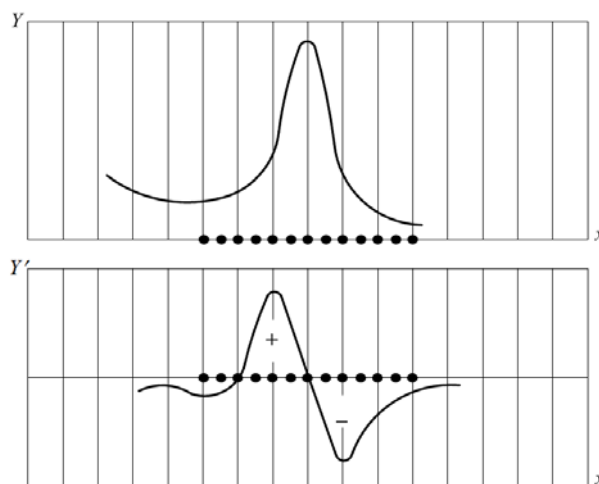


Рис. 4.5.5 График функции исходного спектра  $y(x)$  и ее производная

Весьма распространенным методом обнаружения пиков является дифференцирование исходного спектра. Он обладает высокой чувствительностью к обнаружению пиков и относительно легко реализуется в автоматизированных программах обработки спектров. Если аппаратный спектр представить как непрерывную функцию от номера канала, то по производной этой функции можно определить положение вершины пика. Действительно, в области пика производная сначала становится большой положительной величиной, а затем, изменяя в некотором канале знак, – большой отрицательной (рис. 4.5.5). Вне пика производная, вследствие общего спадающего характера спектра, всюду имеет небольшое отрицательное значение. Математическое дифференцирование исходного спектра  $y_i$  состоит в нахождении разностей значений  $y_i$  для соседних каналов. Для равноотстоящих друг от друга значений аргумента  $i-1, i, i+1, i+2$  производные будут равны:

$$y'_{i-1} = (y_i - y_{i-1})/\Delta x, \quad y'_i = (y_{i+1} - y_i)/\Delta x, \quad y'_{i+1} = (y_{i+2} - y_{i+1})/\Delta x, \quad (4.5.20)$$

где  $\Delta x$  – ширина канала ( $\Delta x = 1$ , если каналы соседние). Для определения координаты вершины пика отыскивают номера каналов, для которых одновременно выполняются три условия:

$$y'_{i-p} > k_1; \quad y'_i \approx 0; \quad y'_{i+p} < k_2$$

где  $k_1, k_2$  – два пороговых числа, характеризующих значение производной слева и справа от канала, в котором  $y'_i \approx 0$ .

Определяя в пределах заданного интервала каналы, в которых производная  $y'_i$  имеет противоположные знаки, находят координату вершины пика с точностью до долей канала, используя линейную интерполяцию.

Метод второй производной при поиске вершины пика основан на том, что вторая производная всюду практически равна нулю, а в области пика она испытывает резкие изменения.

Для равноотстоящих друг от друга значений аргумента – номеров канала  $i-1, i, i+1$  вторая производная исходного спектра будет равна:

$$y''_i = (y'_i)' = \frac{y'_{i+1} - y'_i}{\Delta x} = \frac{(y_{i+2} - y_{i+1})/\Delta x - (y_{i+1} - y_i)/\Delta x}{\Delta x} = \frac{y_{i+2} - 2y_{i+1} + y_i}{\Delta x^2}. \quad (4.5.21)$$

В записи конечных разностей вторая производная равна:

$\Delta^2 y_i = y_{i+2} - 2y_{i+1} + y_i$  – для  $i$ -го канала. Ее график получается сдвинутым на один канал по отношению к графику  $y_i$ , но, полагаясь на формальные операции, можно принять, что

$$\Delta^2 y_i = y_{i-1} - 2y_i + y_{i+1}.$$

Считают, что пик с максимумом существует, если вторая конечная разность  $\Delta^2 y_i$  удовлетворяет одновременно следующим условиям:

$$\Delta^2 y_{i-p} > k_1, \Delta^2 y_i < -k_2, \Delta^2 y_{i+p} > k_3, \quad (4.5.22)$$

где  $k_1, k_2, k_3$  – пороговые коэффициенты, которые определяются эмпирически;  $i, i-p, i+p$  – номера каналов, где, соответственно, вторая производная имеет наименьшее отрицательное значение, и максимумы.

Метод второй производной весьма чувствителен к статистическим флуктуациям отсчетов в каналах, и поэтому вторые разности обычно вычисляются для предварительно сглаженных спектров или, что практически одно и то же, производится сглаживание вторых разностей исходного спектра.

Для тех участков спектра, где находятся пики с малой статистикой, эффективно использование корреляционного метода их поиска, если хотя бы приближенно из градуировки известна полная ширина пика. Этот параметр может быть оценен по визуальной картине нерасшифрованного спектра или из предварительных измерений с использованием других методов поиска пиков, например по статистическим характеристикам спектра.

Сущность корреляционного метода заключается в том, что поиск пиков проводится путем определения корреляционных связей спектрального распределения  $y_i$  с подобной ему функцией  $g_i$ , которую называют регрессионной функцией или функцией подобия (или

подгонки). Известно, что если функции  $g_i$  и  $y_i$  подобны, то сумма их произведения  $\sum_{i=1}^n g_i y_i$

будет максимальной. Именно это свойство используется для нахождения канала, который соответствует вершине пика.

#### **Определение положения пика (центроиды)**

Правильное определение положения пика (центроиды) имеет принципиальное значение для проведения идентификации радионуклидов, присутствующих в измеряемом образце. Эта задача особенно актуальна в случае использования гамма-спектрометрических систем с высоким разрешением для анализа сложного по составу спектра. В данном подразделе рассматриваются наиболее простые методы определения положения 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 выбирают их центроиды, определенные осью симметрии. Пики полного поглощения обычно хорошо описываются функцией Гаусса следующего вида:

$$y(x) = y_0 \exp\left[-(x - x_0)^2 / 2\sigma^2\right], \quad (4.5.23)$$



где  $y(x)$  – число отсчетов в канале  $x$ ;  $y_0$  – амплитуда пика;  $x_0$  – центроида пика;  $\sigma^2$  – дисперсия.

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 параметром  $\sigma^2$  (дисперсией) и полной шириной на половине высоты ПШПВ функции Гаусса справедливо следующее соотношение:

$$\text{ПШПВ} = 2\sqrt{2\ln 2}\sigma = 2,3582\sigma. \quad (4.5.24)$$

Площадь под кривой Гаусса определяется выражением

$$S = \sqrt{2\pi}\sigma y_0 = 1,0645(\text{ПШПВ})y_0. \quad (4.5.25)$$

Постоянная в последней части уравнения 4.5.25 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. Отклонения от кривой Гаусса трудно различимы за исключением наличия незначительного низкоэнергетического хвоста.

#### Визуальное определение положения пика

Человеческий глаз очень хорошо делит пополам симметричные формы. Когда пик может быть выведен на дисплей многоканального анализатора (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.

#### Графическое определение положения пика

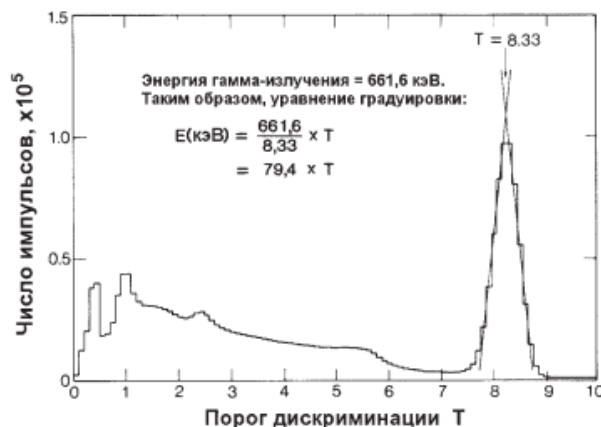


Рис. 4.5.6. График спектра  $^{137}\text{Cs}$ , полученного с помощью сцинтилляционного детектора

На рис. 4.5.6 показан спектр  $^{137}\text{Cs}$ , полученный с помощью высококачественного сцинтиллятора NaI(Tl) с размерами чувствительного объема  $7,62 \cdot 7,62$  см и одноканального анализатора. Для определения центроиды пика графическим методом 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 построением прямых линий вдоль обеих сторон пика через центры полос. Пересечение двух линий и является центром пика.

*Определение положения пика методом первых моментов*

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

$$\bar{x} = \frac{\int_{x_1}^{x_2} xy(x)dx}{\int_{x_1}^{x_2} y(x)dx} \approx \frac{\sum x_i y_i}{\sum y_i}, \quad (4.5.26)$$

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 4.5.26 является первым моментом функции  $y(x)$ . Для функции Гаусса (уравнение 4.5.23)  $x = x_0$ . 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 ПШПВ 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. 4.5.7 показаны примеры правильного и неправильного выбора диапазона суммирования.

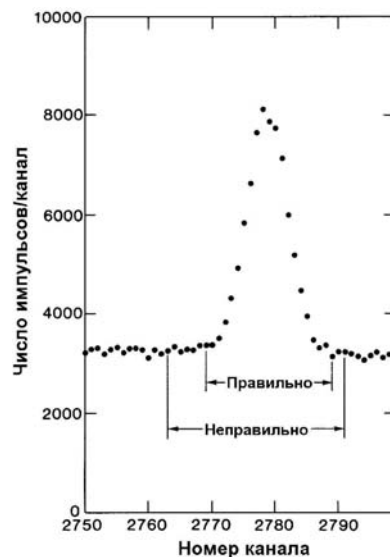


Рис. 4.5.7. Участок спектра с пиком, на котором представлены правильно и неправильно выбранные диапазоны суммирования при определении центроиды пика методом первого момента

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

*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:

$$x_0 = x_m + \frac{y_{m+1}(y_m - y_{m-2}) - y_{m-1}(y_m - y_{m+2})}{y_{m+1}(y_m - y_{m-2}) + y_{m-1}(y_m - y_{m+2})}, \quad (4.5.27)$$

где  $m$  – номер канала с максимальным числом отсчетов;  $y_i$  – число отсчетов в канале  $x_i$ . Уравнение 4.5.27 предполагает, что форма пика близка к форме кривой Гаусса. Подобная формула может быть выведена в предположении, что вершина пика имеет параболическую форму. Уравнение 4.5.27 хорошо работает, когда выше точки ПШПВ имеется от 6 до 30 каналов, а также достаточное число отсчетов в пяти каналах для четкого описания формы верхушки 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.

#### *Другие методы определения положения пика*

Для определения положения пика полного поглощения широкое распространение имеют методы подгонки с помощью линеаризованной или параболаризованной функций Гаусса. 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.

#### **Идентификация пиков**

После того как пики полного поглощения были найдены и им однозначным образом приписаны энергии, соответствующие их центроидам, становится возможным выполнить процедуру идентификации пиков, то есть приписать их наличие тому или другому из известных радионуклидов. Данная процедура также не является тривиальной, как и все остальные.

Основной причиной сложности идентификации является наличие огромной базы данных по гамма-излучению радионуклидов. При использовании баз данных, содержащих гамма-линии всех известных радионуклидов, расчетная программа часто не может сама сделать однозначный выбор или приписывает их несуществующим в образце радиоизотопам. Таким образом, при наличии сложного спектра неизвестного состава, образованного смесью радионуклидов в образце, экспериментатор вынужден самостоятельно разбирать спектр, анализируя его на возможность присутствия того или иного радиоизотопа. Анализ радионуклидного состава становится на много проще и может быть полностью автоматизирован, когда исследователю заранее известен примерный или точный перечень изотопов присутствующих в образце. В этом случае может быть составлена библиотека нуклидов, соответствующая их содержанию в исследуемых образцах и вероятность появления ошибок в идентификации практически снизится до нуля. Такие библиотеки часто создаются при проведении специфических и рутинных анализов ядерных материалов, продуктов деления, продуктов активации, а также естественных радионуклидов, содержащихся в природной среде.

Сложности в анализе спектра могут возникнуть, также по причине наличия в нем дополнительных пиков. Источником дополнительных пиков являются следующие эффекты и процессы:

- эффект суммирования;
- вылет характеристического рентгеновского излучения германия из объема детектора;
- вылет аннигиляционного излучения;
- регистрация излучения от аннигиляции позитронов.

В ряде случаев возможно суммирование гамма-излучений разных энергий. Так, при измерении плутониевых образцов может наблюдаться очень интенсивное излучение  $^{241}\text{Am}$ . Импульсы от квантов с энергией 59,54 кэВ могут суммироваться с импульсами от излучений с энергиями 94,65(U XK $_{\alpha}$ ), 98,43(U XK $_{\alpha}$ ), 101,07(Np XK $_{\alpha}$ ) кэВ и создавать, таким образом,

помехи при измерении пиков с энергиями 152,7 кэВ  $^{238}\text{Pu}$  и 160,3 кэВ  $^{240}\text{Pu}$ . Для подавления указанных помех применяют фильтры из кадмия и олова, эффективно поглощающие излучение с энергией 59,54 кэВ.

Другой пример суммирования – полупарный пик, возникающий при регистрации гамма-излучения 1173 кэВ  $^{60}\text{Co}$ , имеет энергию  $1173-511=662$  кэВ (результат вылета аннигиляционного гамма-кванта, см далее по тексту), практически совпадающую с энергией излучения  $^{137}\text{Cs}$ , равной 661,7 кэВ. При измерениях  $^{137}\text{Cs}$  в присутствии  $^{60}\text{Co}$  происходит суммирование, которое может существенно исказить результаты анализа (например, при измерениях бочек с ЖРО).

Часто наблюдаются случаи суммирования при измерениях гамма-квантов, испускаемых в каскаде. Так, при измерениях излучения  $^{60}\text{Co}$  в спектре появляется пик с энергией  $1173+1332=2505$  кэВ. Искажающий эффект зависит от объема детектора и геометрии измерений.

Вылет характеристического рентгеновского излучения германия из объема детектора существенен при измерениях низкоэнергетических гамма-излучений, когда поглощение квантов происходит вблизи границы чувствительного объема и вероятность вылета характеристического излучения велика. При этом в спектре рядом с фотопиками возникают пики вылета с энергиями, равными  $E_{\gamma} - 9,9$  кэВ.

Таблица 4.5.2 Типичные линии спектра естественных фоновых радионуклидов

Регистрируемый радионуклид	Энергия излучения в фоновом спектре, кэВ	Примечания
$^{212}\text{Pb}$	75,0	
$^{214}\text{Pb}$	74,8	
$^{208}\text{Tl}$	75,0	
$^{234}\text{Th}$	92,9	
$^{226}\text{Ra}$	186,2	
$^{228}\text{Ac}$	209,3	
$^{212}\text{Pb}$	238,6	
$^{228}\text{Ac}$	270,2	
$^{208}\text{Tl}$	278,0	
$^{214}\text{Pb}$	295,2	
$^{228}\text{Ac}$	328,0	
$^{228}\text{Ac}$	338,0	
$^{214}\text{Pb}$	351,9	
$^{228}\text{Ac}$	463,0	
$^{208}\text{Tl}$	511,0	двойная линия
$\beta^+$	511,1	двойная линия
$^{208}\text{Tl}$	583,0	
$^{214}\text{Bi}$	609,3	
$^{212}\text{Bi}$	727,0	
$^{228}\text{Ac}$	794,7	
$^{208}\text{Tl}$	860,4	
$^{228}\text{Ac}$	911,1	
$^{214}\text{Bi}$	1120,3	
$^{214}\text{Bi}$	1238,1	
$^{214}\text{Bi}$	1337,7	
$^{40}\text{K}$	1460,8	
$^{208}\text{Tl}$	1592,5	двойной вылет
$^{212}\text{Bi}$	1620,6	
$^{228}\text{Ac}$	1630,4	
$^{214}\text{Bi}$	1729,6	
$^{214}\text{Bi}$	1764,5	

Вылет аннигиляционного излучения происходит при образовании электронно-позитронных пар в материалах детектора (при  $E_{\gamma} > 1022$  кэВ). В результате аннигиляции

позитрона возникают два гамма-кванта с энергией 511 кэВ каждый. Если один из этих квантов вылетает из детектора, образуется импульс, регистрирующийся в пике с энергией  $E_\gamma$  - 511 кэВ, если вылетают оба – импульс регистрируется в пике с энергией  $E_\gamma$  - 1022 кэВ. Таким образом, в спектре возникают дополнительные пики одиночного и двойного вылета.

В спектре образцов, содержащих радионуклиды, испытывающие  $\beta^+$ -распад, содержатся пики с энергией 511 кэВ, создаваемые излучением, возникающим при аннигиляции позитронов внутри образцов.

Кроме вышеперечисленных, существует еще ряд эффектов, обусловленных рассеянием квантов, возбуждением рентгеновского излучения и других, которые способны влиять на результаты спектрометрических измерений.

Для процесса идентификации радионуклидов в ходе гамма-спектрометрического анализа особую роль играет корректный учет фона. Фоновое излучение присутствует при любых гамма-спектрометрических измерениях. Его источником являются радионуклиды естественного происхождения, находящиеся в природной среде. Прежде всего, к ним относятся продукты распада урана и тория, а также  $^{40}\text{K}$  (см табл. 4.5.2). Кроме естественных радионуклидов, фон могут создавать искусственные, источником которых является глобальное загрязнение окружающей среды, локальное производственное загрязнение, а также наличие в лаборатории во время измерений других образцов, мешающих проведению анализов.

Фоновое излучение в современных программных кодах обработки результатов гамма-спектрометрических измерений вычитается автоматически. Однако необходимо следить, чтобы вычитаемый спектр был достаточно представительным (набранным за продолжительный период времени) и при вычитании корректировался в соответствии с временами измерения фона и образца.

#### ***NS4.5.3 Определение изотопного состава***

Особое значение определение изотопного состава имеет при обращении с ядерными материалами, прежде всего, с ураном и плутонием. Знание изотопного состава этих материалов необходимо для решения различных задач, таких как поддержание ядерной безопасности, обеспечение гарантий, проведение ядерных расследований и тому подобное. Для определения массы урана и плутония с помощью нейтронных методов или калориметрии также необходимо знание изотопного состава исследуемого материала. Учитывая важность перечисленных задач, для определения изотопного состава урана и плутония были развиты специфические методы, а также технические и программные средства, имеющие как общие черты, так и свои различия. В данном разделе отдельно рассматриваются основы определения обогащения урана и изотопного состава плутония.

#### ***Определение обогащения урана***

Образцы урана и плутония в ядерном топливном цикле представляют собой смеси изотопов с широким диапазоном содержаний, поэтому изотопный состав образцов часто служит объектом измерений. Определение удельного содержания изотопа  $^{235}\text{U}$  в образце посредством радиационных измерений, которые наиболее часто применяются для определения содержания делящегося изотопа  $^{235}\text{U}$  в образцах урана, обычно называют «обогащением урана». Термин обогащение используется потому, что содержание  $^{235}\text{U}$  в материалах топливного цикла обычно выше, чем в природном уране.

Обогащение может быть выражено в атомарных или весовых единицах. Атомарное содержание  $^{235}\text{U}$  в уране определяется следующим выражением:

$$E_a (\text{at.}\%) = \frac{\text{Число} \cdot \text{атомов} \ ^{235}\text{U}}{\text{Число} \cdot \text{атомов} \ \text{U}} \times 100\% \quad (4.5.28)$$

Обогащение так же может быть выражено как «весовое содержание»:

$$E_w (\text{вес.}\%) = \frac{\text{Количество} \cdot \text{граммов} \ ^{235}\text{U}}{\text{Количество} \cdot \text{граммов} \ \text{U}} \times 100\% \quad (4.5.29)$$

Две величины обогащения соотносятся как

$$Ew(\text{вес.}\%) = \frac{235E_a}{238 - 0,03E_a} \approx \frac{235}{238} E_a \quad (14.5.30)$$

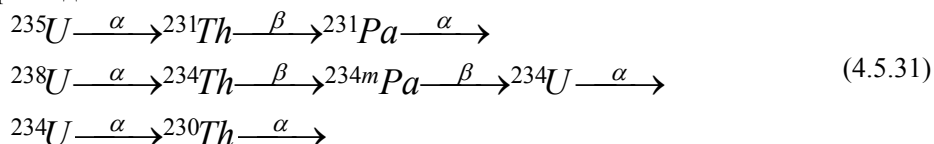
*U как излучатель*

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  $^{235}\text{U}$ . Однако для образцов урана низкого обогащения наиболее интенсивным компонентом в спектре излучения является рентгеновское излучение. При измерении обогащения  $^{235}\text{U}$  наиболее часто используется линия гамма-излучения с энергией гамма-квантов 185,7 кэВ. Она является самой выделенной одиночной линией гамма-излучения для любых образцов урана с обогащением по  $^{235}\text{U}$  выше природного уровня. Обычно интерференции спектральных линий нет, кроме случая регенерированного топлива, в котором гамма-кванты с энергией 236 кэВ изотопа  $^{212}\text{Pb}$ , дочернего продукта  $^{232}\text{Th}$ , накладываются на линию  $^{235}\text{U}$ . В табл. 4.5.3 приведены наиболее интенсивные гамма-линии изотопов урана.

Таблица 4.5.3. Наиболее интенсивные гамма-линии урана

Изотоп	Энергия гамма-излучения, кэВ	Удельная интенсивность излучения, квант/с*г изотопа
$^{232}\text{U}$	129,1	$6,5 \cdot 10^8$
	270,5	$3,0 \cdot 10^7$
	327,8	$2,7 \cdot 10^7$
$^{233}\text{U}$	119,0	$3,9 \cdot 10^4$
	120,8	$3,2 \cdot 10^4$
	146,4	$6,6 \cdot 10^4$
	164,6	$6,4 \cdot 10^4$
	245,3	$3,8 \cdot 10^4$
	291,3	$5,8 \cdot 10^4$
	317,2	$8,3 \cdot 10^4$
$^{234}\text{U}$	120,9	$5,4 \cdot 10^5$
$^{235}\text{U}$	143,8	$7,8 \cdot 10^3$
	163,4	$3,7 \cdot 10^3$
	185,7	$4,3 \cdot 10^4$
	202,1	$8,0 \cdot 10^2$
	205,3	$4,0 \cdot 10^3$
$^{238}\text{U}$ в равновесии с $^{234\text{m}}\text{Pa}$	742,8	7,1
	766,4	$2,6 \cdot 10^1$
	786,3	4,3
	1001,0	$7,5 \cdot 10^1$

В природе преобладают три изотопа урана (в круглых скобках приведено содержание атомов этих изотопов):  $^{238}\text{U}$  (99,27%),  $^{235}\text{U}$  (0,720%) и  $^{234}\text{U}$  (0,006%).  $^{234}\text{U}$  образуется в результате альфа-распада  $^{238}\text{U}$ :



Если образец получен в реакторе, в нем также могут присутствовать другие изотопы урана, включая  $^{236}\text{U}$ , получаемый в результате захвата нейтрона ядром  $^{235}\text{U}$ , и  $^{237}\text{U}$  из реакции  $(n, 2n)$  на ядрах  $^{238}\text{U}$ .

*Метод бесконечно толстых образцов*

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. Исторически первым был разработан метод измерения обогащения, основанный на предположении, что интенсивность гамма-излучения  $^{235}\text{U}$  из образцов урана достаточной толщины пропорциональна их обогащению. Гамма-кванты с энергией 185,7 кэВ при распадах  $^{235}\text{U}$  испускаются с вероятностью  $(57,5 \pm 0,9)\%$ , число квантов указанного излучения достигает  $4,3 \cdot 10^4$  квант/с-г (см. табл. 4.5.3).

Длины свободного пробега и «бесконечные» толщины для квантов 185,7 кэВ в соединениях урана приведены в табл. 4.5.4. «Бесконечной» называют толщину слоя вещества равную 7 длинам свободного пробега в нем гамма-квантов.

Таблица 4.5.4. Длины свободного пробега и «бесконечные» толщины для квантов 185,7 кэВ в соединениях урана

Соединение	Плотность, г/см <sup>3</sup>	Длина свободного пробега, см	Бесконечная толщина, см
Металл	18,7	0,04	0,26
UF <sub>6</sub> (твердый)	4,7	0,20	1,43
UO <sub>2</sub> (спеченный)	10,9	0,07	0,49
UO <sub>2</sub> (порошок)	2,0	0,39	2,75
Нитрат уранила	2,8	0,43	3,04

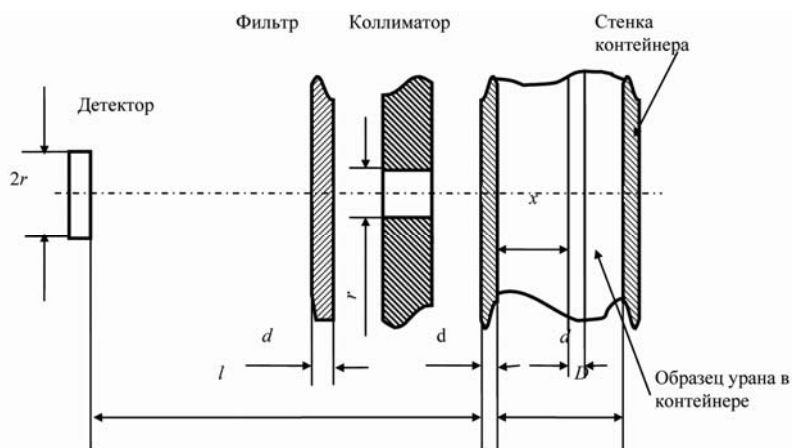


Рис. 4.5.8. Схема геометрии измерения обогащения урана по  $\gamma$ -излучению образца

Вероятность поглощения монотонно увеличивается при уменьшении энергии, но при энергии гамма-лучей близкой к энергии связи электронов на К-оболочке происходит ее резкое изменение, которое носит название К-края. Из-за резкого уменьшения коэффициента поглощения при энергиях ниже К-края, вероятности поглощения излучений в U и Pu при энергиях 100 кэВ и 200 кэВ почти одинаковые. Существование К-края имеет большое значение для проведения денситометрических и рентген- флуоресцентных анализов.

На рис. 4.5.8 представлена геометрия измерений обогащения урана по гамма-излучению образца. Детектор регистрирует излучение, прошедшее через фильтр и коллиматор. С помощью коллиматора устанавливается площадь видимой детектором поверхности одинаковой для образцов разной геометрии. Фильтр поглощает излучение в области энергий ниже 185,7 кэВ, что позволяет разгрузить измерительный тракт, повысить долю сигналов 185,7 кэВ в полном потоке сигналов через тракт и, соответственно, сократить время измерения. Фильтры изготавливаются из материалов среднего веса (Cd, Ni и др.).

Обычно  $l \gg D$ ,  $l \gg R$ ,  $l \gg r$ . Для заданных условий измеренная скорость счета импульсов в фотопике  $n_p = S_\phi / t$ , где  $S_\phi$  – счет импульсов в фотопике,  $t$  – время измерения определяется следующим выражением:

$$n_p = (\Omega_d / 4\pi) \varepsilon \lambda_{235} (N_A / A_U) \rho_U E I \theta \exp(-\mu_\phi \rho_\phi d_\phi) \exp(-\mu_K \rho_K d_K) \int_0^D \exp(-\mu_l x) dx, \quad (4.5.32)$$

где  $\Omega_d$  – телесный угол, ограниченный отверстием коллиматора;

$\varepsilon$  – эффективность детектора при  $E_\gamma = 185,7$  кэВ;

$\lambda_{235}$  – постоянная распада  $^{235}\text{U}$ ;

$N_A$  – число Авогадро;

$A_U$  – атомная масса урана в образце;

$\rho_U$  – плотность урана в образце;

$E$  – обогащение;

$I$  – квантовый выход (коэффициент ветвления) излучения 185,7 кэВ;

$\theta$  – площадь отверстия коллиматора;

$\mu_\phi, \rho_\phi, d_\phi$  – массовый коэффициент ослабления, плотность и толщина фильтра;

$\mu_K, \rho_K, d_K$  – массовый коэффициент ослабления, плотность и толщина стенки контейнера;

$\mu_l$  – коэффициент ослабления гамма-излучения в образце урана.

После вычисления интеграла и преобразований формула 4.5.32 приводится к следующему виду:

$$n_p = K \frac{ET_K T_\phi (1 - T_{обр.})}{[1 + (\mu_M / \mu_U) \cdot (\rho_M / \rho_U)]}, \quad (4.5.33)$$

где  $K = [(\Omega_d / 4\pi) \varepsilon \lambda_{235} I A_U T_\phi]$ ;

$T_{обр.}$  – коэффициент пропускания для исследуемого образца;

$T_K$  – коэффициент пропускания для стенки контейнера;

$T_\phi$  – коэффициент пропускания фильтра;

$\mu_U, \rho_U$  – массовый коэффициент ослабления и плотность урана;

$\mu_M, \rho_M$  – массовый коэффициент ослабления и плотность матрицы.

Член  $[1 + (\mu_M / \mu_U) \cdot (\rho_M / \rho_U)]$  учитывает разбавление урана в образце другими материалами (кислород, фтор, плутоний и др.). Он зависит от состава измеряемого материала. Для элементов с  $Z < 30$  отношение  $(\mu_M / \mu_U) \leq 0,1$ , а для большинства соединений урана  $(\rho_M / \rho_U) \leq 0,2$ . Таким образом, эта поправка редко бывает больше 1,02.

Все параметры в выражении для  $K$  являются константами для конкретной геометрии измерений. Если они хорошо известны, можно обойтись без использования эталонов. Однако в действительности  $K$  определяют с помощью физического эталона, и его значение становится калибровочным коэффициентом. Таким образом, искомое значение обогащения получают по формуле:

$$E = \frac{n_p [1 + (\mu_M / \mu_U) \cdot (\rho_M / \rho_U)]}{KT_K T_\phi (1 - T_{обр.})}, \quad (4.5.34)$$

где  $(1 - T_{обр.})$ ,  $T_K$ ,  $T_\phi$ ,  $[1 + (\mu_M / \mu_U) \cdot (\rho_M / \rho_U)]$  являются поправками, которые, будучи раз определенными, используются для измерений с любыми образцами с аналогичным составом и в аналогичной упаковке.

Чаще всего измерения обогащения проводились на образцах, для которых  $T_{обр.} = 0$  (бесконечно толстые образцы).  $T_K$  может быть подсчитан с достаточно малой погрешностью, если известен материал и толщина стенки контейнера. Точное значение толщины стенки можно оценить с помощью ультразвукового толщиномера.

Спектры излучения урановых образцов, измеренные на NaI и Ge(Li)-спектрометрах, представлены на рис. 4.5.9 и 4.5.10.



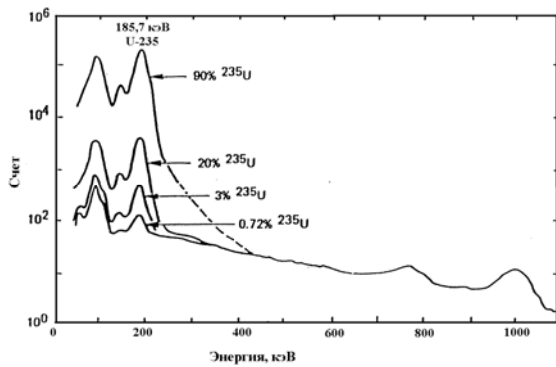


Рис. 4.5.9. Спектры урана, полученные на NaI(Tl)-спектрометре (кристалл 70×70 мм)

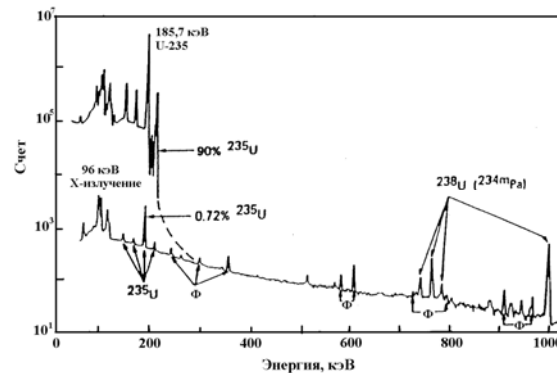


Рис. 4.5.10. Спектры урана, полученные на Ge(Li)-спектрометре (эффективность детектора 14%)

При измерениях на Ge-детекторах отсутствуют проблемы с вычитанием фона. Пики примерно в 20 раз уже, чем при измерениях на NaI-детекторах, соответственно выше отношение пик/фон. Несколько больше поправка на «мертвое» время, так как сигналы Ge-детектора более длинные. Погрешность анализа может составлять 0,1% за разумный промежуток времени.

Счет импульсов в фотопике  $S_p = p - fb$ , где  $p$  – суммарный счет импульсов в заданном диапазоне энергий, включающем фотопик 185,7 кэВ,  $b$  – суммарный счет импульсов фона в диапазоне выше пика,  $f$  – коэффициент пересчета между измеренным фоном и фоном в области пика. Фон оценивается путем экстраполяции по числам отсчетов в каналах выше пика (см. рис. 4.5.11).

При анализах бесконечно толстых образцов  $E = n_p / K = Ap + Bb$ ,  $B = -fA$ , где  $A$ ,  $B$  – калибровочные коэффициенты, определенные из измерений с эталоном.

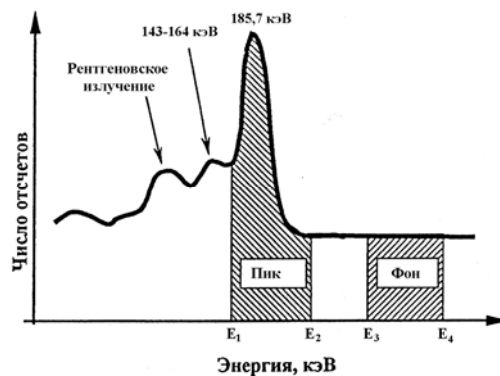


Рисунок 4.5.11. Спектр гамма-излучения урана, измеренный на NaI детекторе

При измерениях обогащения образцов «бесконечной» толщины детектор «видит» через коллиматор часть поверхности образца. Для всех однородных образцов видимый объем содержит одинаковое количество урана. Интенсивность излучения 185,7 кэВ пропорциональна содержанию  $^{235}\text{U}$  в образце. Для калибровки измерительной системы нужен подходящий эталон – аттестованный урановый образец. Точность анализа зависит от степени обогащения и составляет 1–5% при измерениях на NaI-детекторе и 0,1–1% при измерениях на Ge-детекторе.

Главный недостаток метода измерения обогащения урана, основанный на регистрации излучения 185,7 кэВ – необходимость калибровки измерительной системы для каждого нового контейнера с образцом урана. Этого недостатка лишен метод измерения обогащения по относительной интенсивности гамма-излучений  $^{235}\text{U}$  и  $^{238}\text{U}$ .

*Метод соотношения пиков полного поглощения*

В методике отношения пиков требуется измерить отношения интенсивностей гамма-излучения основных изотопов и использовать эту информацию для определения обогащения урана.

Для измерений обогащений урана необходимо определить скорости счета для нескольких гамма-пиков двух основных изотопов урана ( $^{235}\text{U}$  и  $^{238}\text{U}$ ) и нормировать результаты измерений на общую кривую эффективности.

Для построения графика относительной эффективности как функции энергии требуется измерение интенсивности известных пиков в этом диапазоне энергий.

Наиболее интенсивными пиками гамма-излучения  $^{238}\text{U}$  являются пики от его дочернего изотопа  $^{234\text{m}}\text{Pa}$ , находящиеся в энергетическом диапазоне от 700 до 1000 кэВ (см. табл. 4.5.3). Большая разница энергий между фотонами гамма-излучения  $^{234\text{m}}\text{Pa}$  ( $^{238}\text{U}$ ) и гамма-квантами 185,7 кэВ от  $^{235}\text{U}$  делает необходимой существенную поправку на отличие относительной эффективности детектора, включая поглощение квантов в материалах образца и контейнера.

Существует три диапазона энергии в спектре гамма-излучения, которые можно использовать для определения обогащения урана: 53–68 кэВ, 84–130 кэВ и 185–1001 кэВ. Все эти диапазоны были использованы при разработке специального программного обеспечения для определения обогащения урана. В настоящее время для определения изотопного состава урана и плутония чаще всего используются разработанные в Лос-Аламосской лаборатории расчетные коды MGA (MGAU для определения обогащения урана) и FRAM. Особенности использования обеих программ для анализа урана и плутония рассматриваются далее в данном разделе.

#### *Расчетный код MGAU*

Методика расчета, использованная в этой программе, не предполагает использование эталона для калибровки по эффективности спектра излучения образца. Измерение обогащения проводится в диапазоне энергии 84–130 кэВ. Основное ограничение на применение данного метода обусловлено относительно слабой проникающей способностью измеряемых излучений. Основная трудность работы в диапазоне 84–130 кэВ – близость измеряемых излучений по энергиям, – в настоящее время преодолевается путем применения LeGe-детекторов с высоким разрешением.

Область 84–130 кэВ включает ряд  $\gamma$ - и XK- линий изотопов урана. Излучения  $^{235}\text{U}$  и  $^{238}\text{U}$  в этой области очень близки по энергии, и поэтому регистрируются с почти равной эффективностью.

Соотношение между концентрациями изотопов в образце получают по формуле:

$$N_i / N_k = n_p^i / n_p^k \cdot T_{1/2}^i / T_{1/2}^k \cdot I_\gamma^k / I_\gamma^i \cdot \varepsilon_\gamma^k / \varepsilon_\gamma^i, \quad (4.5.35)$$

где  $N_i$ ,  $N_k$  – число атомов  $i$ -го и  $k$ -го изотопов в образце соответственно;

$T_{1/2}^i$ ,  $T_{1/2}^k$  – периоды полураспада  $i$ -го и  $k$ -го изотопов соответственно;

$\varepsilon_\gamma^i$ ,  $\varepsilon_\gamma^k$  – эффективности регистрации излучений в анализируемых пиках  $i$ -го и  $k$ -го изотопов соответственно (которые в данном случае включают эффективность детектора, геометрию измерений, самопоглощение излучений в образце и их ослабление в материалах между образцом и детектором);

$I_\gamma^i$ ,  $I_\gamma^k$  – квантовые выходы излучений, регистрируемых в анализируемых пиках  $i$ -го и  $k$ -го изотопов соответственно.

Скорость счета  $n_p^i$  и концентрация  $i$ -го изотопа соотносятся следующим образом:

$$\frac{n_p^i}{I_\gamma^i} = \left( \frac{N^i \cdot \ln(2)}{T_{1/2}^i} \right) \cdot \varepsilon_\gamma^i. \quad (4.5.36)$$

Член в скобках имеет одинаковое значение для всех гамма-излучений, испускаемых одним изотопом. Поэтому отношение  $(n_p^i / I_\gamma^i)$  пропорционально эффективности  $\varepsilon_\gamma^i$ .

Процедура измерений относительной эффективности включает:

- определение скоростей счета  $n_p^i$  в ряде пиков, принадлежащих одному изотопу, и вычисление значений  $n_p^i / I_\gamma^i$ , характеризующих эффективность  $\varepsilon_\gamma^i$ . Величины  $I_\gamma^i$  известны для каждой группы квантов образующих эти пики  $S_i$ ;
- полученные значения  $\varepsilon_\gamma^i$  для ряда пиков используют для построения зависимости  $\varepsilon_\gamma$  от  $E_\gamma$ . Кривые  $\varepsilon_\gamma(E)$  для излучений разных нуклидов имеют одинаковую форму, различны лишь масштабные коэффициенты ( $N^i \cdot \ln 2 / T_{1/2}^i$ ).

Учет изменений относительной эффективности тем более важен, чем сильнее различаются энергии гамма-линий, используемых для определения изотопного соотношения.

Часть спектра уранового образца и его компоненты, используемые для анализа, показаны на рис. 4.5.12. Особенность задачи разложения спектра состоит в том, что гамма- и рентгеновские пики имеют разную форму (и требуются разные модели для их описания). Многие из этих пиков принадлежат не  $^{235}\text{U}$  и  $^{238}\text{U}$ , а их дочерним продуктам.

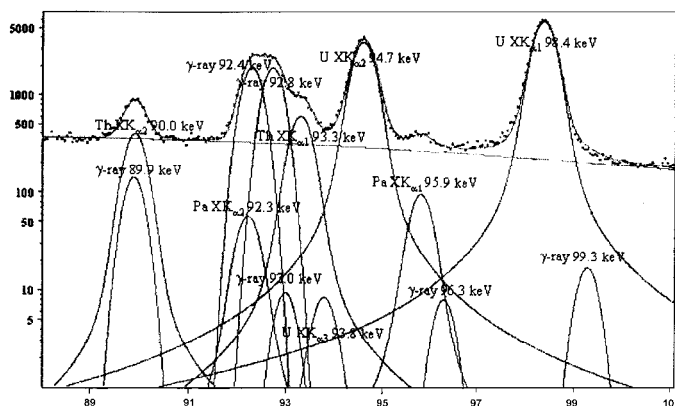


Рис. 4.5.12. Спектр излучения урана в энергетическом диапазоне 88-100 кэВ и результат его математического разложения на отдельные компоненты

Хорошее разрешение необходимо для обеспечения высокой точности определения изотопного состава. С другой стороны для сокращения расхода времени на анализ целесообразно увеличивать рабочую поверхность (и светосилу) детектора. Для анализа подобного рода обычно используется U-Pu InSpector с LeGe-детектором площадью 5 см<sup>2</sup>, который обладает разрешением 550–600 эВ для энергии 122 кэВ при загрузке 5000 имп/с. Для выполнения анализа большинства образцов с приемлемой точностью требуется 600–1000 сек.

Для определения относительного содержания  $^{235}\text{U}$  используют рентгеновские пики 89,95 кэВ (Th XK<sub>α2</sub>) и 93,35 кэВ (Th XK<sub>α1</sub>), а для  $^{238}\text{U}$  – дуплет перекрывающихся гамма-пиков 92,37 кэВ и 92,79 кэВ ( $^{234}\text{Th}$ ). Рентгеновские пики 89,95 кэВ и 93,35 кэВ распада  $^{235}\text{U}$  и гамма-дуплет 92,37 кэВ и 92,79 кэВ  $^{238}\text{U}$  очень близки по энергиям, поэтому и относительные эффективности их регистрации близки (требуются только малые поправки на различия, которые получаются из сравнения интенсивностей измеренных XK<sub>α2</sub> и XK<sub>α1</sub> пиков урана с энергией 94,65 кэВ и 98,43 кэВ соответственно). Пики 98,4 кэВ и 185,7 кэВ используются для градуировки шкалы энергии и определения реальной формы рентгеновских и гамма-пиков в полученных спектрах.

Содержание  $^{234}\text{U}$  определяется по гамма-линии 121 кэВ. Измерения производятся на спектрометрах с разрешением не хуже 700 эВ для гамма-излучения 122 кэВ  $^{57}\text{Co}$  (обычно с помощью планарного LeGe детектора (рис. 4.5.13)). Погрешность определения обогащения составляет не более нескольких процентов для образцов урана в диапазоне обогащений от обедненного до высокообогащенного (от 0,3 % до 93 %  $^{235}\text{U}$ ). Вблизи границ этого интервала погрешности возрастают. Наилучшие результаты могут быть получены для образцов с 10 %-ным обогащением, когда амплитуды пиков характеризующих содержание  $^{235}\text{U}$  и  $^{238}\text{U}$  одинаковые.



Рисунок 4.5.13. Внешний вид LeGe детектора с многоканальным анализатором



Рисунок 4.5.14. Вид коаксиального HpGe детектора в криостате

#### Ограничения метода:

- гамма-дуплет 92,37 кэВ и 92,79 кэВ, используемый для определения относительного содержания  $^{238}\text{U}$ , принадлежит  $^{234}\text{Th}$  – продукту  $\alpha$ -распада  $^{238}\text{U}$ . Поэтому дочерний  $^{234}\text{Th}$  в образце должен быть в равновесии с материнским  $^{238}\text{U}$ , которое наступает лишь приблизительно через 5 месяцев после химического выделения урана;
- толщина стенок контейнера влияет на точность анализа (16 мм стенка стального контейнера с  $\text{UF}_6$  ослабляет излучение 90–100 кэВ приблизительно в 250 раз);
- широко распространенные анализы с помощью программы MGAU основаны на измерениях мягкого излучения и не подходят для контроля защищенных образцов. При экранировании излучателя фотонов необходим другой подход.

#### Расчетный код FRAM

В настоящее время развиты методы определения обогащения урана, основанные на измерениях с коаксиальным Ge-детектором в более жестком диапазоне энергии, включающем излучения  $^{235}\text{U}$  (185,7 кэВ, 205,3 кэВ и др.) и  $^{238}\text{U}$  (766,4 кэВ, 1001 кэВ и др.), и построении кривой относительной эффективности для этого диапазона. Такие методы дают возможность проводить измерения образцов в контейнерах. Необходимость использования экранирующего материала также может быть обусловлена необходимостью измерения ЯМ в помещениях, где присутствуют посторонние излучатели, которые загружают измерительную систему и мешают наблюдениям. В этом случае требуется снижать фон либо путем улучшения характеристик измерительной системы (повышение разрешения и др.), либо с помощью защиты детектора. Для этого используют пассивную, активную и комбинированную защиты. Пассивная защита – экраны из различных материалов. Для защиты от жесткого гамма-излучения используют экраны из материалов с большим  $Z$  (обычно Pb). При поглощении гамма-квантов в Pb образуются бета-частицы, которые возбуждают тормозное и характеристическое рентгеновское излучение Pb. Для защиты от вторичного излучения используются многослойные экраны из материалов с большим, средним и малым  $Z$ .

Применение FRAM дает возможность использовать для анализов более жесткие излучения. На рис. 4.5.10 представлены спектры излучения образцов урана с разным обогащением, полученные с помощью коаксиального Ge(Li)-детектора (см. рис. 4.5.14). Энергии измеряемых линий сильно различаются (на графике присутствуют две линии обогащения: 0,7% и 90%), поэтому в методе не столь велики требования к разрешению аппаратуры, как при измерении обогащения образцов урана в диапазоне 100 кэВ (с помощью программы MGAU) или при анализе образцов плутония с помощью FRAM. Сведения об энергетическом спектре изотопов урана, который используется в программе FRAM, для анализа представлены в табл. 4.5.5.

Таблица 4.5.5. Энергетические линии излучения урана, используемые в программе FRAM

<sup>234</sup> U		<sup>235</sup> U		<sup>236</sup> U		<sup>238</sup> U	
E <sub>γ</sub> , кэВ	γ/с·г	E <sub>γ</sub> , кэВ	γ/с·г	E <sub>γ</sub> , кэВ	γ/с·г	E <sub>γ</sub> , кэВ	γ/с·г
120,9	9,44·10 <sup>4</sup>	143,8	7,8·10 <sup>3</sup>			258,4	5,2
		163,4	3,7·10 <sup>3</sup>			742,8	7,1
		185,7	4,3·10 <sup>4</sup>			766,4	60
		195,0	4,7·10 <sup>2</sup>			786,3	4,3
		202,1	8,0·10 <sup>2</sup>			880,5	1,6
		205,3	3,76·10 <sup>3</sup>			883,2	1,6
						946,0	2,5
						1001	50

Анализ приведенных в табл. 4.5.5 данных об излучениях изотопов урана позволяет сделать следующие выводы:

- гамма-линии <sup>235</sup>U и <sup>238</sup>U располагаются в разных областях энергии, что затрудняет определение относительной эффективности их регистрации методом самокалибровки;
- отсутствует гамма-излучение <sup>236</sup>U, что не позволяет использовать гамма-спектрометрию для контроля содержания этого изотопа, которое в регенерированном уране может составлять несколько процентов;
- <sup>234</sup>U представлен лишь одной довольно мягкой линией.

Перечисленные факторы сужают возможности контроля изотопного состава урана рассматриваемым методом.

Гамма-излучение, которое приписывают <sup>238</sup>U, фактически возникает в результате распада <sup>234m</sup>Pa, дочернего изотопа с периодом полураспада равным 24 дням. Поэтому измерения, проведенные ранее, чем через 100 дней после химической очистки образцов урана, т.е. до достижения равновесия между <sup>238</sup>U и <sup>234m</sup>Pa, неточны.

В регенерированном уране содержится <sup>232</sup>U, который с периодом полураспада 68,9 лет распадается в <sup>228</sup>Th. Гамма-линии <sup>228</sup>Th с энергиями 238, 583, 727 и 860 кэВ могут наблюдаться в спектре и их можно использовать для построения кривой относительной эффективности.

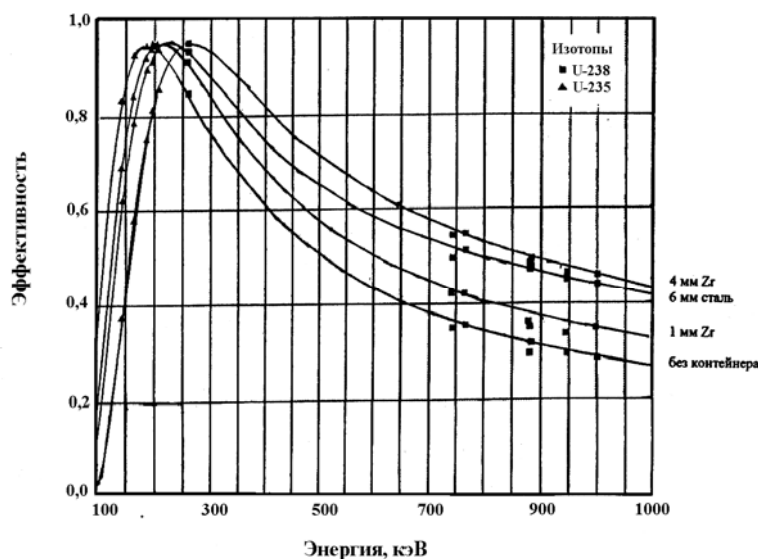


Рис. 4.5.15. Зависимость относительной эффективности от толщины и материала контейнера (образец – шаровой твэл, содержащий 5,7 г U с обогащением 6,5%)

В программе FRAM для анализа изотопного состава урана реализованы два разных подхода к построению кривой относительной эффективности. В одном случае для сшивки низкоэнергетического диапазона, в котором присутствуют линии <sup>235</sup>U, и высокоэнергетического, содержащего линии <sup>238</sup>U (<sup>234m</sup>Pa), используют гамма-линию <sup>238</sup>U с

энергией 258,4 кэВ. Такой подход применим для анализа образцов низкообогащенного урана. На рис. 4.5.15 приведены кривые относительной эффективности, полученные при измерениях образца, находившегося в контейнерах из разных материалов с разной толщиной стенок. В спектрах высокообогащенных образцов гамма-линия  $^{238}\text{U}$  с энергией 258,4 кэВ слишком слаба и маскируется фоном. Для построения кривой эффективности в этом случае используют  $\gamma$ -линии  $^{228}\text{Th}$ . В соответствии с вышеизложенным, в программе FRAM предлагаются два набора параметров для анализа соотношения  $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$  в урановых образцах низкого и высокого обогащения.

Погрешность анализа оценивают по результатам ряда повторных измерений эталонов. Было продемонстрировано, что применение FRAM дает возможность успешно измерять низкообогащенный уран через 15-миллиметровый слой стали.

Роль эталонов при гамма-спектрометрических измерениях изотопного состава U существенно отличается от их роли в других методах неразрушающего контроля. При гамма-спектрометрии искомые значения получают, используя известные физические константы (периоды полураспада нуклидов, квантовые выходы излучений) и результаты самокалибровки. Тем не менее, эталоны имеют большое значение для контроля качества измерений этим методом. Только с помощью эталонов можно установить, что полученные результаты имеют нужное качество, и оценить их погрешности.

Измерения с HpGe-детекторами и обработкой спектров с помощью программы FRAM использовались для контроля равномерности распределения Pu и U в порошках и таблетках MOX-топлива. Был обнаружен лишь один недостаток выбранного метода – большая продолжительность измерения. Для определения отношения  $^{239}\text{Pu}/^{235}\text{U}$  с погрешностью 1,5% ( $P=0,95$ ) потребовалось провести измерение длительностью 6–8 часов.

Первая стадия анализа с помощью программы FRAM схожа с MGAU – внутренняя калибровка. Определяются зависимости канал/энергия, ПШПВ/энергия, форма пика/энергия, причем используются специально выбранные пики в измеренном спектре. Для внутренней калибровки служат те же спектры, которые далее анализируются. Определяется фон в области каждого пика. Для нахождения фона используют участки спектра, где пики отсутствуют. Счет в отдельных каналах на этих участках служит для построения фоновой функции. Пользователь может выбрать одну из восьми функций для описания фона: линейную, квадратичную, экспоненциальную и др. Затем определяется ПШПВ отдельных пиков. Пики, которые предназначаются для нахождения «хвостовых» коэффициентов, задаются в наборе параметров. Для каждого из этих пиков определяется его гауссова часть с использованием ранее полученных данных о ПШПВ, затем эта часть вычитается из канальных отсчетов. Далее модель «хвоста» подгоняют к полученным результатам с помощью метода наименьших квадратов (см. рис. 4.5.16).

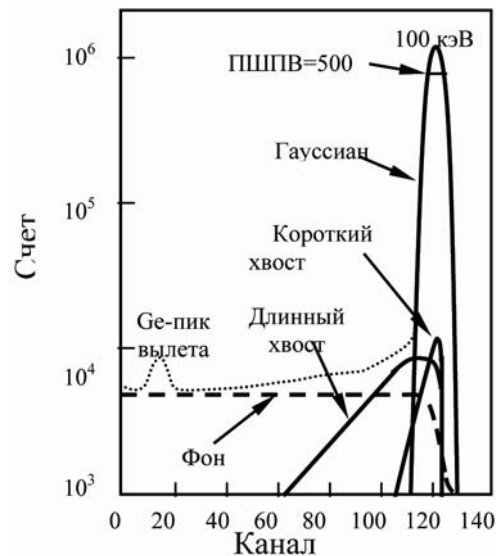


Рисунок 4.5.16. Представление пика полного фотопоглощения в программе FRAM

На второй стадии анализа для каждого анализируемого диапазона оценивается сплошной фон, создаются функции отклика и эти функции подгоняются к «чистому» счету. Затем определяются площади под пиками, которые используются для построения функций относительной эффективности в диапазоне измерений спектра.

Кривая относительной эффективности имеет вид:

$$\ln \varepsilon = C_1 + C_2 E^2 + C_3 (\ln E) + C_4 (\ln E)^2 + C_5 (\ln E)^3 + C_i + C_j E^{-1} \quad (4.5.37)$$

где  $C_i$  – нормировочные коэффициенты для всех изотопов кроме первого;

$C_j$  – нормировочный коэффициент для различных кривых относительной эффективности, построенных по пикам разных изотопов, кроме первой;

$E$  – энергия (МэВ).

Относительная эффективность может быть получена из результатов измерений гамма-излучения. С учетом относительной эффективности оцениваются относительные активности отдельных изотопов и определяется состав изотопной композиции.

Таким образом, проведение анализа изотопного состава урана с помощью FRAM имеет ряд особенностей и недостатков:

- наиболее интенсивные линии  $^{235}\text{U}$  в низкоэнергетической части спектра 100–200 кэВ, а  $^{238}\text{U}$  в высокоэнергетической 700–1000 кэВ. Поэтому построение единой функции относительной эффективности для всего диапазона измерений затруднено;
- квантовые выходы излучений  $^{238}\text{U}$ , используемые в анализе, очень малы, а период полураспада велик ( $4,47 \cdot 10^9$  лет). Поэтому для обеспечения удовлетворительной точности могут потребоваться длительные измерения;
- изотоп  $^{234}\text{U}$  накапливается в уране по мере увеличения обогащения, а его относительная концентрация может достигать 1,5–2,0 % в высокообогащенном уране. В этих случаях необходимо учитывать содержание  $^{234}\text{U}$  в анализируемых образцах. Данные о концентрации  $^{234}\text{U}$  получают путем определения относительной интенсивности  $\gamma$ -линии 120,9 кэВ в спектре уранового образца, которая может сильно ослабляться материалом контейнера;
- как уже упоминалось, при изготовлении ТВС современных энергетических реакторов может использоваться регенерированный (т.е. выделенный из облученного топлива) уран. Во время предыдущих облучений в нем по механизму реакции  $^{235}\text{U}(n, \gamma)$  накапливается  $^{236}\text{U}$  – четно-четный пороговый нуклид. Его относительная концентрация может превышать 1%. В этом случае его присутствие нужно учитывать. Однако его слабое и мягкое гамма-излучение трудно поддается измерениям, и FRAM не дает информации о нем. Соответствующие поправки на наличие  $^{236}\text{U}$  могут быть сделаны расчетным путем или по результатам других видов анализов;
- в регенерированном уране содержится также  $^{232}\text{U}$ , который с периодом 68,9 лет распадается в  $^{228}\text{Th}$ . Гамма-линии  $^{228}\text{Th}$  с энергиями 238, 583, 727 и 860 кэВ могут наблюдаться в спектре, и их можно использовать для построения кривой относительной эффективности.

Несмотря на перечисленные недостатки, программа FRAM характеризуется следующими очевидными достоинствами:

- возможностью анализа материалов в контейнерах или в других конфигурациях, когда излучение экранируется защитой от гамма-излучения;
- легкой приспособляемостью к условиям различных измерений без необходимости перепрограммирования;
- возможностью для пользователя редактировать параметры анализа, что позволяет добиваться хороших результатов в сложных случаях.

#### **Определение изотопного состава плутония**

Принципиальные подходы, о которых было рассказано в подразделе «Определение обогащения урана» применимы также к определению изотопного состава плутония. Хотя в

анализах есть также ряд различий. Тем не менее, оба программных кода (MGA, FRAM) успешно используются для определения изотопного состава плутония, также как и обогащения урана.

*Особенности изотопного состава плутония*

Большинство образцов плутония содержат  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Pu}$  и  $^{242}\text{Pu}$  в разных соотношениях. Соотношение зависит от условий облучения образцов (глубины выгорания), а также условий переработки и длительности хранения на различных этапах обращения с ядерным материалом. Кроме того, в образцах всегда присутствуют  $^{241}\text{Am}$  и  $^{237}\text{U}$  – продукты распада  $^{241}\text{Pu}$ . Данные о характеристиках распадов перечисленных изотопов представлены в табл. 4.5.6. Схема ядерных превращений, сопровождающих распады  $^{241}\text{Pu}$  показана на рис. 4.5.15.

Из-за большого периода полураспада изотопа  $^{241}\text{Am}$  концентрация его дочерних продуктов распада продолжает увеличиваться вплоть до 75 лет. Старые образцы плутония часто имеют очень высокое содержание  $^{241}\text{Am}$ , особенно если начальная концентрация  $^{241}\text{Pu}$  была очень высока.

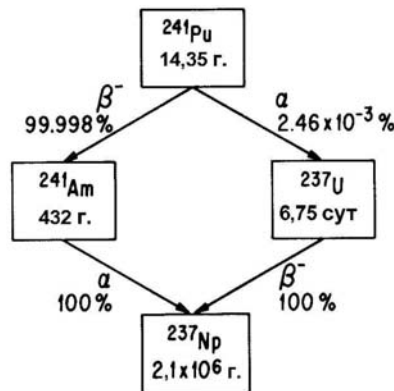
*Таблица 4.5.6 Характеристики распада изотопов плутония*

Изотоп	$T_{1/2}$ , лет	Активность, расп/с·г
$^{238}\text{Pu}$	$87,74 \pm 0,04$	$6,33 \cdot 10^{11}$
$^{239}\text{Pu}$	$24119 \pm 26$	$2,2942 \cdot 10^9$
$^{240}\text{Pu}$	$6564 \pm 11$	$8,3971 \cdot 10^9$
$^{241}\text{Pu}$	$14,348 \pm 0,022$	$3,8244 \cdot 10^{12}$
$^{242}\text{Pu}$	$376300 \pm 900$	$1,4522 \cdot 10^8$
$^{241}\text{Am}$	$433,6 \pm 1,4$	$1,2655 \cdot 10^{11}$
$^{237}\text{U}$	6,75 сут	$9,4080 \cdot 10^{7*}$

\*) – при условии равновесия с  $^{241}\text{Pu}$ .

Вследствие своего короткого времени полураспада дочерний изотоп  $^{237}\text{U}$  быстро приходит в равновесие с материнским изотопом  $^{241}\text{Pu}$ . После приблизительно 47 дней (7 периодов полураспада), гамма-излучение  $^{237}\text{U}$  может быть использовано в качестве меры определения содержания  $^{241}\text{Pu}$ . Поскольку  $^{237}\text{U}$  имеет несколько интенсивных гамма-линий, именно они особенно часто используются при измерениях изотопного состава плутония. Термины «равновесие  $^{241}\text{Pu}$  -  $^{237}\text{U}$ » или «возраст» относятся к образцам, в которых изотоп  $^{237}\text{U}$  находится в установившемся (вековом) равновесии с изотопом  $^{241}\text{Pu}$ . Образцы, в которых равновесие  $^{241}\text{Pu}$  -  $^{237}\text{U}$  не достигнуто, именуются «свежевыделенными». Для них изотоп  $^{237}\text{U}$  не может быть использован в качестве меры содержания изотопа  $^{241}\text{Pu}$ .

Изотопы  $^{241}\text{Am}$  и  $^{237}\text{U}$  распадаются до одного и того же изотопа  $^{237}\text{Np}$  (см. рис. 4.5.17). При этом оба изотопа могут образовывать одни и те же возбужденные состояния  $^{237}\text{Np}$  и испускать идентичные гамма-кванты. Таким образом, наиболее используемые пики гамма-излучения  $^{237}\text{U}$  имеют вклад от  $^{241}\text{Am}$ , величина которого зависит от конкретной гамма-линии и от времени, когда америций последний раз был выделен из образца.



*Рис. 4.5.17. Схема распадов  $^{241}\text{Pu}$  и его дочерних продуктов*



Изотоп  $^{242}\text{Pu}$  имеет всего несколько гамма-линий, которые по энергии и выходу подобны таким же линиям  $^{240}\text{Pu}$ . Однако большой период полураспада  $^{242}\text{Pu}$  и его низкое содержание в большинстве образцов плутония делают его определение с помощью гамма-измерений практически невозможным. Вместо этого используется эмпирическая изотопная корреляция для расчета содержания  $^{242}\text{Pu}$  по другим изотопным составляющим. Такой расчет концентрации  $^{242}\text{Pu}$  (как правило, от 0,03 до 5%), обычно дает приемлемые результаты для большинства образцов плутония, если не были перемешаны разные его партии и  $^{241}\text{Am}$  не добавлялся и не извлекался из материала.

Многие области спектра гамма-излучения плутония могут содержать интерферирующие гамма-линии от других изотопов, присутствующих в образце. Например, образцы с очень высоким выгоранием часто содержат  $^{243}\text{Am}$  и его дочерний изотоп  $^{239}\text{Np}$ . «Старые» образцы могут содержать  $^{237}\text{Np}$  и его дочерний изотоп  $^{233}\text{Pa}$ . Образцы из регенерированного топлива могут содержать продукты деления и так далее. Поэтому при выполнении гамма-спектрометрических анализов плутониевых образцов важно знать истории их получения (продолжительность облучения в реакторе и выдержки, срок после переработки), что позволяет учесть возможные спектральные интерференции.

*Спектральные области, используемые для изотопных измерений*

В этом подразделе кратко приведены особенности спектров, которые важны для измерения изотопного состава плутония. Описание соответствует методике, используемой в работах Ганнинка с сотрудниками, Лемминга и Рэкеда, в которых спектр разбивается на несколько энергетических областей.

В табл. 4.5.7 приведен перечень большинства гамма-линий, используемых при изотопных измерениях плутония. Согласно приведенным в таблице данным, излучение гамма-квантов низкой энергии происходит намного интенсивнее, чем высокоэнергетических. Однако во многих случаях низкоэнергетические гамма-кванты использовать для анализа сложно или невозможно совсем.

*Таблица 4.5.7. Гамма-линии плутония в различных энергетических областях, используемые для анализов его изотопного состава*

Область энергии	$^{238}\text{Pu}$		$^{239}\text{Pu}$		$^{240}\text{Pu}$	
	Энергия, кэВ	Интенсивность, квант/с·г	Энергия, кэВ	Интенсивность, квант/с·г	Энергия, кэВ	Интенсивность, квант/с·г
40-60	43	$2,49 \cdot 10^8$	51,63	$6,19 \cdot 10^5$	4	$3,80 \cdot 10^6$
90-105	99,86	$4,59 \cdot 10^7$	98,78	$2,80 \cdot 10^4$	104,2	$5,86 \cdot 10^5$
120-450	152,7	$6,05 \cdot 10^6$	129,3	$1,44 \cdot 10^5$	160,3	$3,38 \cdot 10^4$
			203,5	$1,28 \cdot 10^4$		
			345,0	$1,28 \cdot 10^4$		
			375,0	$3,60 \cdot 10^4$		
			413,7	$3,42 \cdot 10^4$		
450-800	766,4	$1,39 \cdot 10^5$	646,0	$3,42 \cdot 10^2$	642,5	$1,05 \cdot 10^3$
			717,7	$6,29 \cdot 10^1$		

*Окончание Таблицы 4.5.7.*

Область энергии	$^{241}\text{Pu}$		$^{241}\text{Am}$	
	Энергия, кэВ	Интенсивность, квант/с·г	Энергия, кэВ	Интенсивность, квант/с·г
40-60	-	-	59,54	$4,54 \cdot 10^{10}$
90-105	103,7	$3,86 \cdot 10^6$	98,95	$2,57 \cdot 10^7$
			102,9	$2,47 \cdot 10^7$
120-450	148,6	$7,15 \cdot 10^6$	125,3	$5,16 \cdot 10^6$
	164,6*	$1,73 \cdot 10^6$	335,4	$6,28 \cdot 10^5$
	208,0*	$2,04 \cdot 10^7$		
	332,4*	$1,14 \cdot 10^6$		
	370,9*	$1,04 \cdot 10^5$		
450-800	-	-	662,4	$4,61 \cdot 10^5$
			722,0	$2,48 \cdot 10^5$

\*) – дочерний  $^{237}\text{U}$  от распада  $^{241}\text{Pu}$  при равновесии  $^{241}\text{Pu}$ - $^{237}\text{U}$ .

#### Область энергии 40 кэВ

Область энергии 40 кэВ используется (см. рис. 4.5.18), главным образом, для анализа свежевыделенных растворов, из которых были удалены  $^{241}\text{Am}$  и  $^{237}\text{U}$ . Если присутствует много  $^{241}\text{Am}$ , 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. Область энергии гамма-излучения 40 кэВ – наиболее используемая для измерений  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239}\text{Pu}$  и  $^{240}\text{Pu}$ , когда это технически возможно. Эта область не содержит измеряемых гамма-квантов  $^{241}\text{Pu}$ . Обычно концентрация  $^{241}\text{Pu}$  измеряется по его гамма-линии 148,6 кэВ. Для малых количеств  $^{241}\text{Pu}$  и  $^{237}\text{U}$  их пики интерферируют с пиком 43,5 кэВ  $^{238}\text{Pu}$ , пиком 45,2 кэВ  $^{240}\text{Pu}$  и пиком 51,6 кэВ  $^{239}\text{Pu}$ .

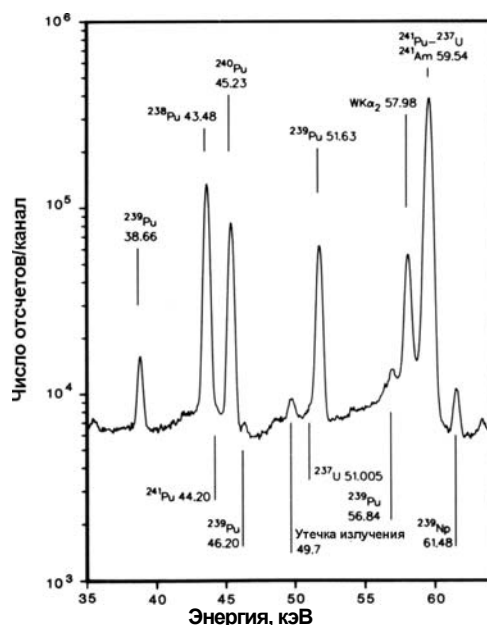


Рис. 4.5.18 Спектр гамма-излучения в области энергии 40 кэВ от раствора свежевыделенного плутония в азотной кислоте, концентрация 185 г/л. (изотопный состав (вес. %):  $^{238}\text{Pu}$  – 0,649 %;  $^{239}\text{Pu}$  – 67,01 %;  $^{240}\text{Pu}$  – 21,80 %;  $^{241}\text{Pu}$  – 8,11 %;  $^{242}\text{Pu}$  – 2,44 %).

#### Область энергии 100 кэВ

Область энергии 100 кэВ является наиболее сложной в гамма-спектре плутония. В ней содержится более 14 линий гамма- и рентгеновского излучения. Рентгеновское излучение урана возникает при распаде плутония и может быть использовано для измерения изотопов плутония. Рентгеновское излучение нептуния возникает при распаде  $^{241}\text{Am}$  и  $^{237}\text{U}$ , 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 (рис. 4.5.19). С ее помощью может быть определено общее распределение изотопов для образцов растворов топлива низкого выгорания. Сложность этой области требует проведения анализа с использованием методов подгонки пиков или функции соответствия. Повышенная активность альфа- и гамма-излучения глубоко выгоревших материалов или образцов растворов высокой концентрации вызывает рентгеновскую флюоресценцию плутония с энергиями 99,53 и 103,75 кэВ. Это рентгеновское излучение интерферирует с пиками гамма-излучения 99,86 кэВ от  $^{238}\text{Pu}$  и 104,24 кэВ от  $^{240}\text{Pu}$ . Однако характерная форма линии рентгеновского излучения отличается от линии гамма-излучения. Эта разница учитывается при анализе этой области методами функции отклика.

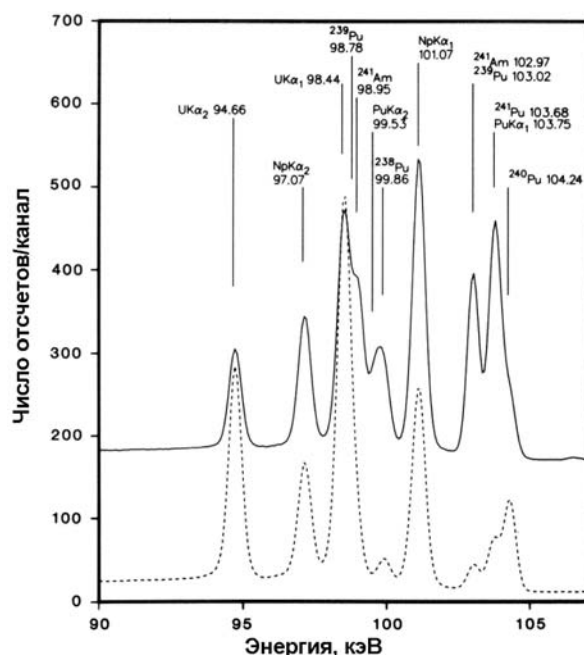


Рис. 4.5.19. Спектр гамма-излучения в области энергии 100 кэВ. Сплошная линия: 530 г плутония в виде PuO<sub>2</sub>. Изотопный состав (вес. %): <sup>238</sup>Pu – 0,302 %; <sup>239</sup>Pu – 82,49 %; <sup>240</sup>Pu – 13,75 %; <sup>241</sup>Pu – 2,69 %; <sup>242</sup>Pu – 0,76 %; <sup>241</sup>Am – 11 800 мкг/г Pu. Пунктирная линия: 10 мл раствора плутония с концентрацией 20 г/л в 1М HNO<sub>3</sub>. Изотопный состав (вес. %): <sup>238</sup>Pu – 0,027 %; <sup>239</sup>Pu – 91,65 %; <sup>240</sup>Pu – 7,68 %; <sup>241</sup>Pu – 0,532 %; <sup>242</sup>Pu – 0,12 %; <sup>241</sup>Am – 315 мкг/г Pu.

#### Область энергии 125 кэВ

Область энергии 125 кэВ используется для измерения <sup>241</sup>Am и <sup>239</sup>Pu с помощью гамма-линий 125,29 и 129,29 кэВ. Имеется сильная интерференция гамма-линии с энергией 125,29 кэВ изотопа <sup>241</sup>Am с линиями 125,21 и 125,51 кэВ изотопа <sup>239</sup>Pu. Площадь пика <sup>241</sup>Am трудно измерить при концентрациях <sup>241</sup>Am ниже нескольких сотен микрограммов на грамм плутония. При концентрации америция около 500 мкг на грамм плутония вклад интерференции <sup>239</sup>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 <sup>241</sup>Am. Во многих экспериментах используются поглотители или фильтры 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.

На рис. 4.5.20 приведены энергии и интенсивности гамма-излучения в области спектра 125 кэВ. Рентгеновские K<sub>β</sub>-линии плутония с энергиями 116,3, 117,3 и 120,6 кэВ 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. 4/5/18) обычно дает более сильный пик <sup>241</sup>Am, но более слабый пик <sup>239</sup>Pu, чем плутоний низкого выгорания. Для материала высокого выгорания точность определения пика 129,29 кэВ изотопа <sup>239</sup>Pu ниже, т.к. в таком образце меньше <sup>239</sup>Pu и потому, что фон под пиком обычно выше вследствие наличия мощного гамма-излучения <sup>241</sup>Pu и <sup>237</sup>U при больших энергиях.

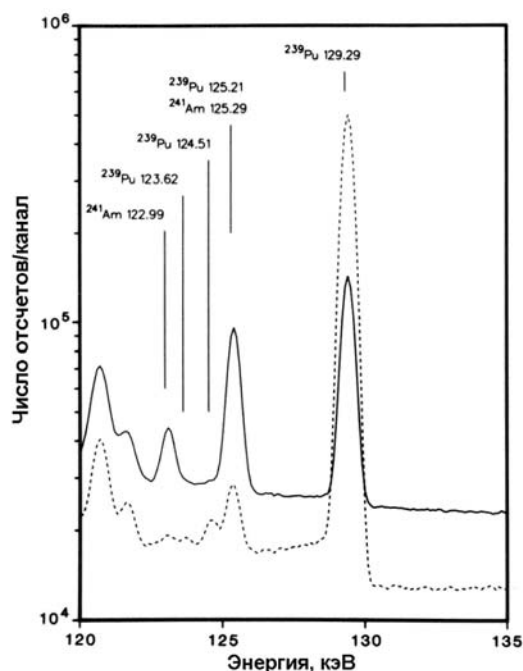


Рис. 4.5.20. Спектр гамма-излучения образцов  $PuO_2$  в области энергии 125 кэВ. Изотопный состав (вес. %): (сплошная линия) –  $^{238}Pu$  – 0,378 %;  $^{239}Pu$  – 78,89 %;  $^{240}Pu$  – 15,28 %;  $^{241}Pu$  – 4,42 %;  $^{242}Pu$  – 1,04 %;  $^{241}Am$  – 14 300 мкг/г  $Pu$ ; (пунктирная линия) –  $^{238}Pu$  – 0,016 %;  $^{239}Pu$  – 93,51 %;  $^{240}Pu$  – 6,15 %;  $^{241}Pu$  – 0,28 %;  $^{242}Pu$  – 0,039 %;  $^{241}Am$  – 480 мкг/г  $Pu$ .

#### 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.

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 %.

#### 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. 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. 4.5.21) 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 %.

Поскольку пик 164,58 кэВ принадлежит  $^{237}U$ , дочернему продукту  $^{241}Pu$ , он может быть использован для измерения  $^{241}Pu$  только после установления равновесия. Часто делается поправка на вклад  $^{241}Am$  в пик 164,58 кэВ. Сумма рентгеновского и гамма-излучения из области 100 кэВ с гамма-линией 59,5 кэВ от  $^{241}Am$  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. В образцах смешанных оксидных материалов пик 163,35 кэВ от

$^{235}\text{U}$  может интерферировать с пиком 164,58 кэВ, если отношение  $^{235}\text{U}$  к  $^{241}\text{Pu}$  больше, чем приблизительно 1,5.

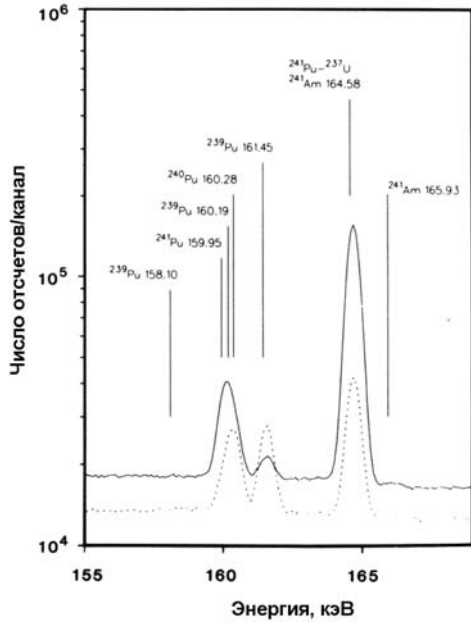


Рис. 4.5.21. Спектр гамма-излучения образцов  $\text{PuO}_2$  в области энергии 160 кэВ, измеренный с помощью детектора ОЧГ с разрешением 490 эВ при энергии 122 кэВ. Изотопный состав (вес. %): (сплошная линия) –  $^{238}\text{Pu}$  – 0,378 %;  $^{239}\text{Pu}$  – 78,89 %;  $^{240}\text{Pu}$  – 15,28 %;  $^{241}\text{Pu}$  – 4,42 %;  $^{242}\text{Pu}$  – 1,04 %;  $^{241}\text{Am}$  – 14 300 мкг/г  $\text{Pu}$ ; (пунктирная линия) –  $^{238}\text{Pu}$  – 0,016 %;  $^{239}\text{Pu}$  – 93,51 %;  $^{240}\text{Pu}$  – 6,15 %;  $^{241}\text{Pu}$  – 0,28 %;  $^{242}\text{Pu}$  – 0,039 %;  $^{241}\text{Am}$  – 480 мкг/г  $\text{Pu}$ .

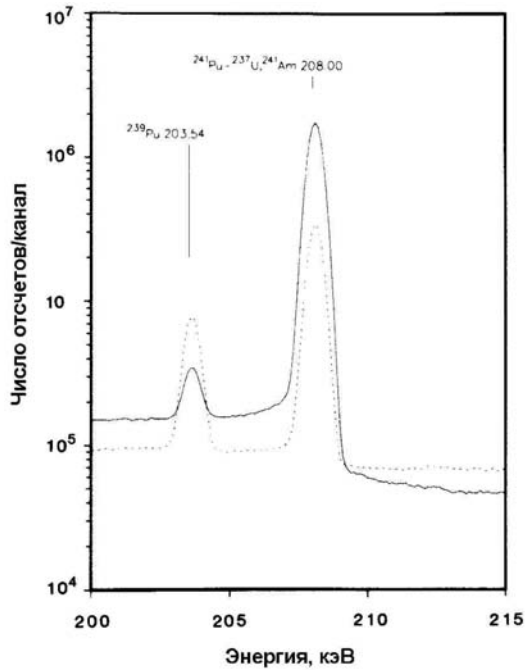


Рис. 4.5.22. Спектр гамма-излучения образцов  $\text{PuO}_2$  в области энергии 208 кэВ. Изотопный состав (вес. %): (сплошная линия) –  $^{238}\text{Pu}$  – 0,378 %;  $^{239}\text{Pu}$  – 78,89 %;  $^{240}\text{Pu}$  – 15,28 %;  $^{241}\text{Pu}$  – 4,42 %;  $^{242}\text{Pu}$  – 1,04 %;  $^{241}\text{Am}$  – 14 300 мкг/г  $\text{Pu}$ ; (пунктирная линия) –  $^{238}\text{Pu}$  – 0,016 %;  $^{239}\text{Pu}$  – 93,51 %;  $^{240}\text{Pu}$  – 6,15 %;  $^{241}\text{Pu}$  – 0,28 %;  $^{242}\text{Pu}$  – 0,039 %;  $^{241}\text{Am}$  – 480 мкг/г  $\text{Pu}$

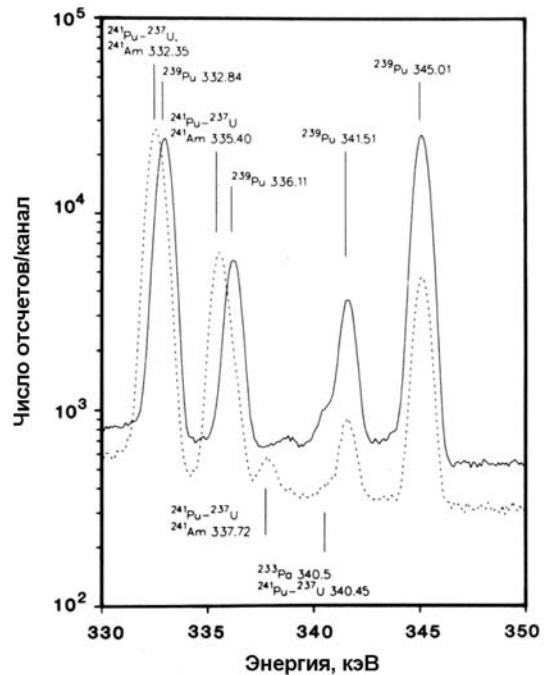


Рис. 4.5.23. Спектр гамма-излучения образцов  $\text{PuO}_2$  в области энергии 332 кэВ. Изотопный состав (вес. %): (сплошная линия) –  $^{238}\text{Pu}$  – 0,0024 %;  $^{239}\text{Pu}$  – 97,96 %;  $^{240}\text{Pu}$  – 2,01 %;  $^{241}\text{Pu}$  – 0,020 %;  $^{242}\text{Pu}$  – 0,0030 %;  $^{241}\text{Am}$  – 11 мкг/г  $\text{Pu}$ ; (пунктирная линия) –  $^{238}\text{Pu}$  – 0,378 %;  $^{239}\text{Pu}$  – 78,89 %;  $^{240}\text{Pu}$  – 15,28 %;  $^{241}\text{Pu}$  – 4,42 %;  $^{242}\text{Pu}$  – 1,04 %;  $^{241}\text{Am}$  – 14 300 мкг/г  $\text{Pu}$

*Область энергии 208 кэВ*

В области энергии 208 кэВ доминирует сильный пик  $^{241}\text{Pu}$ - $^{237}\text{U}$  с энергией 208,00 кэВ. Обычно это наиболее интенсивный пик в спектре. Он содержит вклад от  $^{241}\text{Am}$ , который после 4 лет составляет приблизительно 1 % (относительных). Поскольку это гамма-излучение происходит от  $^{237}\text{U}$ , 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  $^{235}\text{U}$  могут интерферировать с линией 203,54 кэВ от  $^{239}\text{Pu}$ . 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  $^{239}\text{Pu}$  становится хуже из-за комптоновского фона и длинного хвоста от очень сильного пика 208,00 кэВ изотопа  $^{237}\text{U}$ . Высокое содержание  $^{241}\text{Am}$  (~1 %) может вызвать интерференцию в несколько десятых долей процента с пиком 203,5 кэВ, однако эффект от этой интерференции может быть легко устранен. На рис. 4.5.22 показаны спектральные характеристики области энергии 208 кэВ.

*Область энергии 332 кэВ*

Область энергии 332 кэВ состоит из пиков  $^{241}\text{Pu}$ - $^{237}\text{U}$ ,  $^{241}\text{Am}$  и  $^{239}\text{Pu}$ , как показано на рис. 4.5.23. При анализе «старых» материалов высокого выгорания для измерения отношения  $^{239}\text{Pu}/^{241}\text{Pu}$  используется отношение пика 345,01 кэВ от  $^{239}\text{Pu}$  к пику 332,35 кэВ от  $^{241}\text{Pu}$ - $^{237}\text{U}$ . Оба пика 332,35 и 335,40 кэВ от  $^{241}\text{Pu}$ - $^{237}\text{U}$  имеют очень тесную интерференцию с пиками  $^{239}\text{Pu}$ . Для измерения отношения  $^{241}\text{Pu}/^{241}\text{Am}$  после удаления интерферирующих линий  $^{239}\text{Pu}$  могут быть использованы оба комплекса пиков с обеими компонентами  $^{241}\text{Pu}$ - $^{237}\text{U}$  и  $^{241}\text{Am}$ . При анализе этой области энергии используются методы подгонки пика, вычитания пика или функции соответствия.

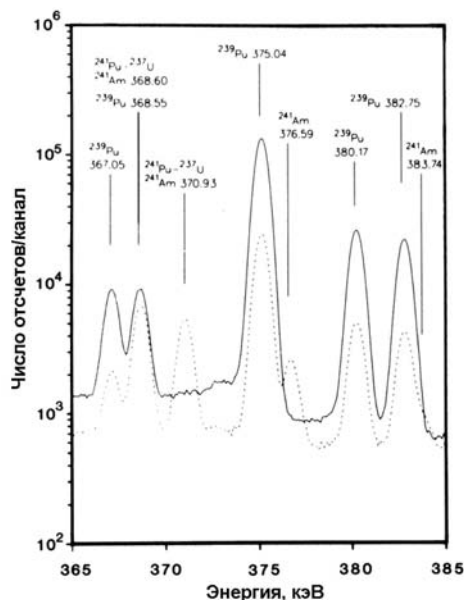


Рис. 4.5.24. Спектр гамма-излучения образцов  $\text{PuO}_2$  в области энергии 375 кэВ. Изотопный состав (вес. %): (сплошная линия) –  $^{238}\text{Pu}$  – 0,0024 %;  $^{239}\text{Pu}$  – 97,96 %;  $^{240}\text{Pu}$  – 2,01 %;  $^{241}\text{Pu}$  – 0,020 %;  $^{242}\text{Pu}$  – 0,0030 %;  $^{241}\text{Am}$  – 11 мкг/г  $\text{Pu}$ ; (пунктирная линия) –  $^{238}\text{Pu}$  – 0,378 %;  $^{239}\text{Pu}$  – 78,89 %;  $^{240}\text{Pu}$  – 15,28 %;  $^{241}\text{Pu}$  – 4,42 %;  $^{242}\text{Pu}$  – 1,04 %;  $^{241}\text{Am}$  – 14 300 мкг/г  $\text{Pu}$

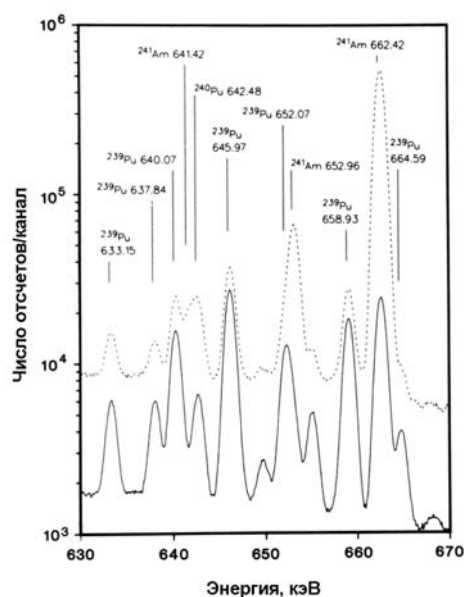


Рис. 4.5.25. Спектр гамма-излучения в области энергии 640 кэВ. Пунктирная линия: 530 г плутония в виде  $\text{PuO}_2$ . Изотопный состав (вес. %):  $^{238}\text{Pu}$  – 0,302 %;  $^{239}\text{Pu}$  – 82,49 %;  $^{240}\text{Pu}$  – 13,75 %;  $^{241}\text{Pu}$  – 2,69 %;  $^{242}\text{Pu}$  – 0,76 %;  $^{241}\text{Am}$  – 11 800 мкг/г  $\text{Pu}$ . Сплошная линия: 500 г металлического плутония. Изотопный состав (вес. %):  $^{238}\text{Pu}$  – 0,012 %;  $^{239}\text{Pu}$  – 93,82 %;  $^{240}\text{Pu}$  – 5,90 %;  $^{241}\text{Pu}$  – 0,240 %;  $^{242}\text{Pu}$  – 0,02 %;  $^{241}\text{Am}$  – 630 мкг/г  $\text{Pu}$

#### Область энергии 375 кэВ

Область энергии 375 кэВ (см. рис. 4.5.24) состоит из пиков тех же изотопов, что и область 332 кэВ:  $^{241}\text{Pu}$ - $^{237}\text{U}$ ,  $^{241}\text{Am}$  и  $^{239}\text{Pu}$ . Для всех изотопов, кроме  $^{239}\text{Pu}$ , выход гамма-квантов ниже, чем в области 332 кэВ, поэтому информация о содержании изотопов будет менее точной. Сильный пик 375,04 кэВ от  $^{239}\text{Pu}$  часто используется для определения относительной эффективности детектора. Интерференция линии 376,59 кэВ изотопа  $^{241}\text{Am}$  становится существенной при содержании выше нескольких тысяч микрограммов на грамм плутония.

#### Область энергии 640 кэВ

На рис. 4.5.25 представлены спектральные характеристики плутония в области энергии 640 кэВ. Это единственная область выше 160 кэВ, которая может быть использована для измерения  $^{240}\text{Pu}$ . Эта область применяется только для больших образцов из-за низкой интенсивности гамма-линии 642,48 кэВ изотопа  $^{240}\text{Pu}$ . Близко расположенные линии  $^{239}\text{Pu}$  и  $^{241}\text{Am}$  усложняют эту область. Для измерения  $^{239}\text{Pu}$  и  $^{241}\text{Am}$  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.

В области 640 кэВ должен использоваться коаксиальный детектор большого объема (с относительной эффективностью 10 % или более). В аналитических схемах, которые анализируют данные для областей энергии от 100 до 400 кэВ, должны использоваться два детектора (планарный и коаксиальный).

Если в образце присутствуют продукты деления, такие как  $^{95}\text{Zr}$ ,  $^{95}\text{Nb}$  и  $^{137}\text{Cs}$ , 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.

#### Определение изотопного состава

Для измерений изотопных отношений в образце плутония обычно используется то же выражение, что и для урана – 4.5.35. Использование отношения эффективностей избавляет от необходимости воспроизведения геометрии и делает метод изотопных отношений применимым к образцам произвольного размера, формы и состава. График относительной эффективности может быть построен при измерении спектра каждого образца. Поскольку в уравнении используется отношение эффективностей, важна только форма графика относительной эффективности.

Для построения кривой относительной эффективности используются площади пиков сильных, свободных от интерференции гамма-линий одиночных изотопов. Для определения относительной эффективности при энергиях между точками измерения используются методики подгонки кривых или интерполяции. Для лучшего построения кривой относительной эффективности могут быть использованы точки более чем одного изотопа путем нормировки одного изотопа на другой. Наиболее часто для построения кривой относительной эффективности в диапазоне энергии от 130 до 450 кэВ используются гамма-линии изотопов  $^{239}\text{Pu}$  и  $^{241}\text{Pu}$ - $^{237}\text{U}$ .

При измерении изотопных отношений выгодно использовать близко расположенные гамма-линии потому, что отношения соответствующих относительных эффективностей будут близки к единице. Однако в области от 120 до 200 кэВ поправки к относительной эффективности необходимо применять даже для близко расположенных линий. Типичная величина поправки 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 содержанием  $^{242}\text{Pu}$ , то:

$$1 = f_{238} + f_{239} + f_{240} + f_{241}, \quad (4.5.38)$$

где  $f_i$  – изотопное содержание  $i$ -го изотопа.

Деление уравнения 4.5.38 на  $f_{241}$  дает уравнение:

$$\frac{1}{f_{241}} = \frac{f_{238}}{f_{241}} + \frac{f_{239}}{f_{241}} + \frac{f_{240}}{f_{241}} + 1. \quad (4.5.39)$$

Формула 4.5.39 выражает содержание изотопа  $^{241}\text{Pu}$  ( $f_{241}$ ) через три измеряемые изотопные отношения  $f_{238}/f_{241}$ ,  $f_{239}/f_{241}$ ,  $f_{240}/f_{241}$ . Содержание остальных изотопов получается из формулы:

$$f_i = f_{241} \cdot \left[ \frac{f_i}{f_{241}} \right]. \quad (4.5.40)$$

Абсолютное содержание  $^{241}\text{Am}$  может быть рассчитано по формуле (4.5.41), если может быть измерено отношение  $^{241}\text{Am}$  к любому из изотопов плутония (обычно  $^{239}\text{Pu}$ ):

$$f_{Am} = f_i \cdot \frac{f_{Am}}{f_i}. \quad (4.5.41)$$

Эта формула дает весовое или атомарное содержание  $^{241}\text{Am}$  в образце по отношению ко 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.

Как уже было упомянуто изотоп  $^{242}\text{Pu}$  не может быть измерен непосредственно, но может быть определен с помощью метода корреляций. Хорошо известно, что между содержаниями изотопов плутония существуют корреляции вследствие природы реакций захвата нейтронов, которые приводят к их образованию. 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. Тем не менее Ганнинк предположил, что формула корреляции линейна и относительно независима от типа реактора:

$$f_{242} = \frac{Kf_{240}f_{241}}{f_{239}^2}. \quad (4.5.42)$$

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  $^{241}\text{Pu}$ , которое уменьшается приблизительно на 5% в год. Лучше всего формула работает, если в содержание  $^{241}\text{Pu}$  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  $^{241}\text{Pu}$  некоторого количества  $^{241}\text{Am}$ . Общее количество дает содержание  $^{241}\text{Pu}$  на время последнего химического разделения.

В некоторых работах была предложена зависимость, не включающая  $^{241}\text{Pu}$ :

$$f_{242} = \frac{Kf_{240}^2}{f_{239}^2}. \quad (4.5.43)$$

Эта формула корреляции линейна для заданного типа реактора, но коэффициент  $K$  зависит от типа реактора.

После того, как изотопное содержание  $^{242}\text{Pu}$  будет определено с использованием подходящей формулы, известных величин или средних величин, остальные изотопные концентрации должны быть откорректированы, используя зависимость:

$$f_i^c = f_i(1 - f_{242}), \quad (4.5.44)$$

где  $f_i^c$  – нормированное изотопное содержание, включающее  $^{242}\text{Pu}$ . Эта формула перенормирует содержания так, что их сумма для всех изотопов плутония равна единице.

При неразрушающих  $\gamma$ -спектрометрических анализах изотопного состава плутония существует проблема определения  $^{242}\text{Pu}$ , который не поддается прямому измерению из-за очень малой интенсивности его гамма-излучения. Полный анализ состава плутония требует либо применения разрушающего анализа (масс-спектрометрического метода), либо оценки содержания  $^{242}\text{Pu}$  методом изотопных корреляций [5.2].

*Общие рекомендации по применению метода*

При измерениях образцов с большой массой можно с хорошей статистикой определить интенсивность излучений с энергиями 642,5 кэВ  $^{240}\text{Pu}$ , 646,0 кэВ  $^{239}\text{Pu}$  и 766,4 кэВ  $^{238}\text{Pu}$ ,



которые обладают большой проникающей способностью и приходят в детектор со всей толщины образца.

Измерения образцов в тонкостенных контейнерах проводят в низкоэнергетических диапазонах с помощью планарных Ge-детекторов. Коаксиальные детекторы используют как в случае тонкостенных, так и толстостенных контейнеров.

$^{241}\text{Am}$  испускает очень интенсивное гамма-излучение с энергией 59,54 кэВ. Импульсы от квантов с энергией 59,54 кэВ могут суммироваться с импульсами от излучений с энергиями 94,65 кэВ (U XK $\alpha_2$ ), 98,43 кэВ (U XK $\alpha_1$ ), 101,07 кэВ (Np XK $\alpha_1$ ) и создавать таким образом помехи при наблюдении пиков с энергиями 152,7 кэВ  $^{238}\text{Pu}$  и 160,3 кэВ  $^{240}\text{Pu}$ . Для подавления этих помех применяют фильтры из Cd, Sn и других материалов (достаточно 2 мм Cd), эффективно поглощающих излучение с энергией 59,54 кэВ.

Успех анализа зависит от свойств детектора: его энергетического разрешения и формы пиков в полученных спектрах. Часто применяют планарные детекторы площадью 200–500 мм<sup>2</sup> и толщиной 10–13 мм. Такие размеры являются компромиссом, позволяющим получать хорошее разрешение (500–700 эВ для пика калибровочного источника  $^{57}\text{Co}$  с энергией 122 кэВ) и приемлемую эффективность.

Из-за снижения эффективности с ростом энергии гамма-лучей применение планарных детекторов ограничено областью  $\leq 400$  кэВ. Для измерений в области более высоких энергий требуется коаксиальный детектор с разрешением  $\leq 1,7$  кэВ для пика калибровочного источника  $^{60}\text{Co}$  с энергией 1332 кэВ.

Контрольные измерения плутониевых образцов проводят с помощью программ MGA и FRAM.

MGA (многогрупповой анализ) — программа для определения изотопного состава Pu по результатам гамма-спектрометрических измерений в диапазоне энергий 99–104 кэВ. Используются все интенсивные гамма-пики и рентгеновские пики в этом диапазоне.

MGA применима для анализа разных композиций: от почти чистого  $^{239}\text{Pu}$  до смеси, содержащей много тяжелых изотопов Pu. Можно анализировать пробы разной массы (от 100 мг) с разными формами Pu: раствор, оксид, металл, смесь Pu и U как свежевыделенные, так и старые. Не требуется ввода данных (они поступают с аналого-цифрового преобразователя — АЦП) и калибровки эффективности.

Ограничения: с помощью гамма-спектрометрии невозможно определить  $^{242}\text{Pu}$  (его гамма-пики в спектре не наблюдаются), MGA неприменима при сильном фоне осколков деления (отработавшее топливо) и для измерений образцов в толстостенных контейнерах.

Программа FRAM позволяет проводить анализы самых разных образцов при содержаниях 2–38 %  $^{240}\text{Pu}$ , 0,01–50 %  $^{241}\text{Am}$ , образцов в толстостенных контейнерах, с неоднородным по объему отношением Am/Pu, образцов из смеси оксидов урана и плутония при соотношениях  $^{235}\text{U}/^{239}\text{Pu}=0,005\text{--}35$ .

## NS4.6 АКТИВАЦИОННЫЙ АНАЛИЗ

Проблема измерений играет важную роль в нераспространении ядерных материалов. Актуальность проблемы выдвигает повышенные требования к чувствительности методов регистрации. Наряду с классическими химическими, физическими и физико-химическими методами анализа, основанными на регистрации свойств электронов внешних оболочек (калориметрия, спектрофотометрия, спектральный анализ) и внутренних оболочек электронов атомов (рентгеноспектральный анализ и его разновидности), используются методы анализа, основанные на регистрации параметров ядер, – радиохимия, масс-спектрометрия, активационный анализ (АА). Методы АА обладают высокой чувствительностью и экспрессностью (в случае инструментального анализа).

Активационный анализ является ведущим методом аналитической химии, широко распространенным в различных сферах деятельности. Активацией называется процесс получения радиоактивных ядер при облучении стабильных ядер нейтронами, протонами и другими частицами. Протекающие при этом ядерные реакции сопровождаются образованием нестабильных изотопов. Основная особенность АА – использование свойств ядер и нечувствительность к свойствам атомов (к химическому состоянию вещества). АА – один из наиболее чувствительных аналитических методов. Предел обнаружения большинства элементов составляет  $10^{-8}$ – $10^{-11}$  %. АА наиболее надежный метод, который часто используется в качестве арбитражного при низких концентрациях определяемых элементов. Недостатками АА являются радиационная опасность и относительно высокая стоимость.

АА применяется в атомной промышленности, электронной промышленности, геохимии, космохимии, биологии, медицине, археологии, истории, криминалистике, металлургии и других областях. Важнейшую роль АА играет в проблеме контроля и нераспространения ядерных материалов.

### *NS4.6.1 Выбор ядерных реакций и времени облучения*

Активационные методы анализа основаны на протекании ядерных реакций. К ним относятся нейтронный активационный анализ, гамма-активационный анализ, активационный анализ с использованием заряженных частиц, анализ по захватному излучению, гамма-резонансный анализ и другие.

Наиболее общими для всех ядерно-физических методов анализа является последовательность и содержание основных процедур:

- выбор ядерных реакций;
- облучение исследуемого вещества первичным ионизирующим излучением, обеспечивающее ядерные реакции с образованием изотопов и возбужденных ядер;
- регистрация и исследование вторичного излучения по интенсивности, спектральным, временным и другим параметрами.

Характерные признаки каждой из этих процедур могут быть положены в основу критерия классификации метода.

Наибольшее распространение получили определения, основанные на критерии типа первичного излучения. Однако развитие методов привело к возникновению многих разновидностей, которые классифицировались по другим критериям. В нейтронно-активационном анализе выделились следующие направления: анализ на быстрых, на тепловых и резонансных нейтронах. В основе каждого из них лежат специфические особенности ядерных реакций, вызываемых нейтронами различных энергий. Можно полагать, что второй критерий более точно отражает физическую сущность методов.

Выбор метода определяется его достоинствами и недостатками (см. табл. 4.6.1). Наиболее распространены нейтронные аналитические методы, основанные на ядерных реакциях, вызванных нейтронами. Это объясняется следующими причинами. Практически все элементы в реакциях с нейтронами образуют изотопы, поэтому этот класс методов является универсальным. В зависимости от энергии нейтронов и характеристик ядер сечения могут различаться на 8–9 порядков, что обеспечивает широкие возможности для выбора

чувствительных и селективных методик. Широкий набор источников нейтронов обеспечивает выбор оптимальных методов исследований. Продукты нейтронных реакций испускают разные виды излучений, отличающихся энергией и периодом полураспада. Это создает дополнительные возможности для разработки и реализации селективных методик. Большая проникающая способность нейтронов позволяет анализировать значительные массы веществ.

Таблица 4.6.1. Классификация ядерных методов анализа

Методы	Реакции	Установившиеся определения	Примечание
Основанные на нейтронных реакциях	$(n, \gamma)$ с образованием радиоактивных ядер	анализ на тепловых нейтронах	Нейтронный активационные методы
	$(n, p), (n, 2n), (n, \alpha)$	анализ на быстрых нейтронах	
	$(n, \gamma)$ по мгновенному излучению	анализ по захватному излучению, включая анализ на резонансных $n$	нейтронно-радиационные методы
	$(n, n' \gamma)$	анализ по $\gamma$ -излучению неупругого рассеяния	
	$(n, f)$	анализ по продуктам деления (в основном по $n$ )	нейтронно-нейтронный метод
Основанные на реакциях $\gamma$ -квантов	$(\gamma, n), (\gamma, 2n)$	фотонейтронный анализ	
	$(\gamma, n), (\gamma, pn), (\gamma, 2n), (\gamma, \alpha), (\gamma, \gamma')$	$\gamma$ -активационный анализ	включая анализ с фотовозбуждением изомеров
	Резонансная флуоресценция $\gamma$ -квантов (без отдачи)	$\gamma$ -резонансный метод анализа	анализ осуществляется по поглощению и рассеянию резонансных $\gamma$ -квантов
Основанные на реакциях заряженных частиц	$(p, \gamma), (p, n), (p, \alpha)$	на протонах	
	$(d, n), (d, p)$ и др.	на дейтронах	
	$(\alpha, n), (\alpha, p), (\alpha, \gamma)$	на альфа-частицах	
	$(He^3, p), (He^3, n)$ и др.	на ядрах $He^3$	

На практике используются две основные измерительные схемы, различия между которыми определяется временной зависимостью между активацией и регистрацией вторичного излучения. В первой схеме источник излучения, анализируемое вещество и детектор вторичного излучения в пространстве совмещены. Этот вариант характеризуется высоким уровнем помех, пониженной чувствительностью и точностью. Вторая экспериментальная схема отличается возможностью транспортировки исследуемых образцов из зоны облучения в зону измерения. Она используется при образовании радиоизотопов с большими периодами полураспада. В этом варианте есть возможность для использования более сложной и совершенной аппаратуры, позволяющей повысить точность и эффективность анализа.

Носителем информации любого ядерного метода анализа является вторичное (регистрируемое) излучение. Вид и характеристики этого излучения – важнейший информатор. Таким образом, третьим критерием классификации является тип вторичного излучения. Это критерий в меньшей степени отражает физическую сущность метода анализа. Наиболее распространены методы, основанные на регистрации вторичного гамма-излучения. Это объясняется следующими причинами:

- продукты большинства ядерных реакций испускают гамма-кванты;
- испускаемое активированными изотопами гамма-излучение характеризуется энергетическим спектром и распределением в пространстве и времени, которые можно использовать при активационном анализе;
- дополнительная информация может быть извлечена путем определения периодов полураспада;

- значительная проникающая способность гамма-излучения обеспечивает возможность анализа больших масс;
- техника регистрации и спектрометрии гамма-излучения достаточно эффективна и точна.

В активационном анализе реализуются два направления: экспрессное и высокочувствительное. К первому направлению относится анализ ограниченного числа элементов. Оно наиболее часто применяется в производствах промышленного масштаба. Второе направление реализует многоэлементный анализ, целью которого являются детальные исследования и контроль ядерных материалов. Оба направления могут быть реализованы при соблюдении следующих условий: определяемый элемент должен обладать достаточным эффективным сечением взаимодействия; радиоизотоп должен иметь характерное излучение; содержание элемента в образце должно превышать порог чувствительности; периоды полураспада элементов должны быть известны.

### **Физические основы**

Активационный анализ основан на ядерных взаимодействиях (ядерные реакции и радиоактивный распад). Исследуемый образец облучают потоком различных частиц или гамма-квантов с энергией, достаточной для активации ядер вещества. Образованный продукт является изотопом исходного элемента или соседнего элемента с новым сочетанием  $A, Z$ . При реакциях деления происходят более глубокие изменения исходных ядер.

Эндотермические ядерные реакции могут происходить, если энергия бомбардирующей частицы больше пороговой энергии. Также к пороговым реакциям относятся реакции с участием (бомбардирующих или вторичных) заряженных частиц. Заряженным частицам приходится преодолевать кулоновский барьер ядра, величина которого зависит от зарядов ядра и налетающей частицы. Когда энергия налетающей частицы не превышает величину энергетического барьера реакции, остаётся вероятность туннельного механизма.

Известно, что ядерные реакции могут протекать по различным вариантам (каналам). Вероятность реализации определённого канала характеризуется парциальным эффективным сечением взаимодействия. Полное сечение ядерной реакции определяется суммой парциальных сечений. Если какой-либо из каналов приводит к образованию радиоактивного изотопа, он представляет наибольший интерес для активационного анализа и характеризуется сечением  $\sigma_{акт}$ . Для характеристики ядерных реакций часто применяют ещё один параметр – выход ядерной реакции, который характеризует отношение числа ядерных реакций к числу первоначальных частиц.

Аналитическое определение выхода при немоноэнергетических частицах сложно и многофункционально. На практике часто выход определяют экспериментально и нормируют его на количество вещества. Количество радиоактивных ядер в облучаемой мишени определяется двумя процессами: образованием радиоактивных ядер и радиоактивным распадом образовавшихся ядер. Количество активных ядер, образующихся в процессе активации, пропорционально эффективному сечению соответствующей ядерной реакции, плотности потока первичных частиц, числу ядер в образце и времени облучения.

Схемы распада часто являются очень сложными и включают несколько конкурирующих превращений. Процесс распада материнского радиоизотопа может привести к образованию радиоактивного дочернего изотопа. Однако большой фактический материал показывает, что нет изотопов с полностью идентичными схемами распада. Это обстоятельство является физической базой активационного анализа.

При АА по мгновенному излучению проба помещается в поток активирующего излучения и проводится анализ плотности потока вторичного излучения. Количественное соотношение между потоком вторичных частиц и количеством исследуемого изотопа определяется уравнением активации 4.6.1:

$$A = \frac{dN_B}{dt} = \eta \cdot \Phi \cdot \sigma \cdot N_A, \quad (4.6.1)$$

где  $\eta$  – выход вторичного излучения;

$N_A$  – удельное число атомов в анализируемом образце,

$N_B$  – удельное число атомов продуктов реакции,

$\Phi$  – плотность потока активирующего излучения.

На практике чаще анализ ведётся по задержанному излучению, то есть измерения проводят вне зоны облучения. В этом случае наблюдается строгая зависимость между измеряемыми параметрами и количеством определяемого элемента. Наиболее простым случаем является облучение моноизотопного элемента потоком моноэнергетических частиц. Пусть ядерная реакция  $A(a,\nu)B$  характеризуется сечением активации  $\sigma_{акт}$ , а продукт реакции радиоактивен и имеет постоянную распада  $\lambda$ . Тогда скорость накопления ядер  $B$  будет характеризоваться скоростью образования и скорости распада ядер  $B$ :

$$\frac{dN}{dt} = \Phi \cdot \sigma_{акт} \cdot N_A - \lambda \cdot N_B. \quad (4.6.2)$$

Из этого уравнения можно определить количество вторичных ядер, образовавшихся за время облучения.

Интегрирование уравнения (4.6.2), при постоянных  $\lambda, \Phi, \sigma_{акт}, N_A$ , позволяет определить количество радиоактивных ядер, образовавшихся за время облучения  $t_{обл}$ :

$$N_B = \frac{\Phi \cdot \sigma_{акт} \cdot N_A}{\lambda} (1 - e^{-\lambda t_{обл}}). \quad (4.6.3)$$

Уравнение 4.6.3 носит название уравнения активации. График зависимости  $N_B(t)$  – представляет собой кривую с насыщением. Поиск условий насыщения является важным, так как определяет максимальное количество активируемого материала, которое может быть получено в результате облучения.

После облучения производится измерение числа распадов за определенный промежуток времени  $t_{изм}$ . Число распавшихся ядер определяется уравнением:

$$N = N_B (1 - e^{-\lambda t_{изм}}) = \frac{\Phi \cdot \sigma \cdot N_A}{\lambda} (1 - e^{-\lambda t_{обл}}) (1 - e^{-\lambda t_{изм}}). \quad (4.6.4)$$

Если между измерением и облучением проходит время  $t_{выд}$ , то в уравнении 4.6.4 становится необходимым учесть распад ядер до измерения:

$$N = N_B (1 - e^{-\lambda t_{изм}}) = \frac{\Phi \cdot \sigma \cdot N_A}{\lambda} (1 - e^{-\lambda t_{обл}}) (1 - e^{-\lambda t_{изм}}) e^{-\lambda t_{выд}}. \quad (4.6.5)$$

На практике часто реализуется ситуация, когда  $t_{изм}$  во много раз меньше периода полураспада, а  $t_{обл}$  во много раз больше периода полураспада (то есть получено максимальное количество активируемого материала или насыщение). Практически насыщение активности вторичных ядер достигается за время облучения, равное 4–5 периодам полураспада (см. подробнее раздел 4.6.2). В этом случае уравнение 4.6.4 примет вид уравнения:

$$N_{расп} \approx \Phi \cdot \sigma_{акт} \cdot N_A \cdot t_{изм}. \quad (4.6.6)$$

При достижении насыщения, активность радиоизотопа и интенсивность мгновенного излучения, при прочих равных условиях, совпадают. Следовательно, необходимые результаты анализа быстрее можно получить путём измерения мгновенного излучения. К сожалению, на практике точность мгновенных измерений понижена за счёт помех активирующего излучения.

Формулы 4.6.3, 4.6.4 и 4.6.6 получены с достаточно грубыми приближениями. На практике условия более сложные. Например, плотность потока активирующего излучения не всегда постоянна. В уравнениях не учитывается выгорание исходного изотопа и процессы самопоглощения в образце. Не определены условия измерений и так далее.

Часто важным условием исследований является необходимость изотопного анализа, проведение которого возможно только в случае определённости изотопного состава. Изотопный состав практически всех элементов периодической таблицы постоянен в естественных объектах. Однако в ряде случаев есть отклонения. Поэтому при активационном

анализе изотопный состав тщательно исследуется, поскольку активация каждого изотопа может привести к ядерным реакциям по нескольким каналам. С одной стороны это затрудняет анализ, с другой – предоставляет дополнительные возможности для оптимизации его условий.

Как правило, в активационном анализе идентификация элемента ведётся по активности изотопа, который в данных условиях обеспечивает лучшие результаты анализа. В других условиях изотоп может быть другим. Эти изотопы называют аналитическими.

При проведении активационного анализа может использоваться абсолютный метод, который сразу приводит к результату по определению количества того или иного элемента. Такой подход реализуется путем использования уравнения активации в заданных (известных, измеренных) условиях облучения. Абсолютный метод используется не часто, поскольку обладает достаточно значительными погрешностями. Суммарная погрешность абсолютного метода зависит от погрешности сечения взаимодействия частиц, стабильности плотности потока активирующих частиц, чувствительности регистрирующей аппаратуры и других факторов. На практике чаще используют относительный метод, который заключается в сравнении активности пробы и стандартного образца. При относительных измерениях отпадает потребность в обеспечении постоянства плотности потока активирующих частиц и точном значении сечения активации.

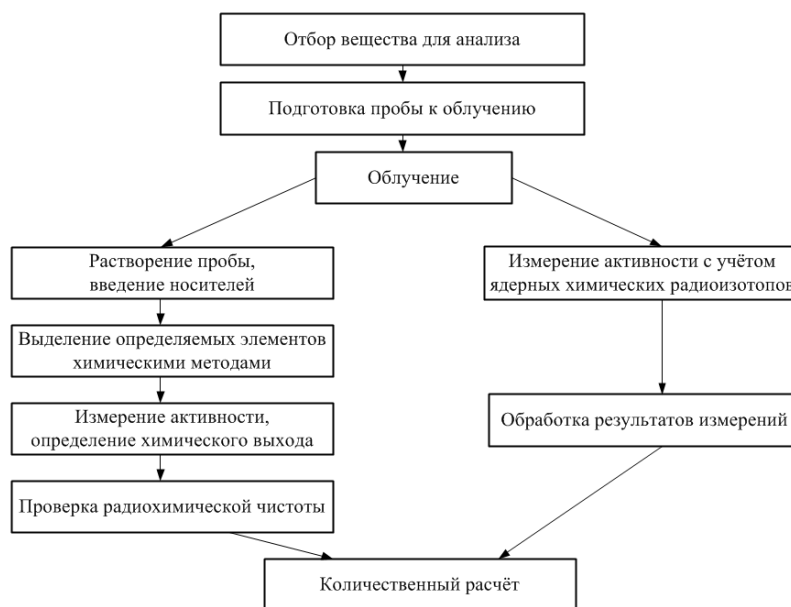


Рис. 4.6.1 Общая схема проведения активационного анализа.

#### Общие процедуры активационного анализа

Аналитическое определение содержания химических элементов методом активационного анализа развивались по двум основным направлениям. Одно из них называется инструментальным активационным анализом. В нём избирательность анализа основывается на ядерно-физических свойствах и сохраняется целостность пробы. Второе – альтернативное направление, связано с разложением пробы и последующим применением химических процедур, избирательность которых определяется уже физико-химическими свойствами элементов – это радиохимические методы анализа.

Любой аналитический анализ состоит из нескольких последовательных операций, часть из которых обязательна, а другие используются по мере необходимости. Общая схема выполнения анализов представлена на рис. 4.6.1.

Стадии первичного отбора пробы имеют большое значение. Материал должен быть получен из определённого источника, не содержать неизвестных загрязнений и потерь определяемых элементов. Необходимы сведения о предыстории и предварительные данные о

составе и массе анализируемого вещества. Процесс предварительной подготовки проб более подробно изложен в 4.7.1 курса.

### **Нейтронный активационный анализ**

Для большинства элементов наиболее чувствительным методом является нейтронный активационный анализ на тепловых нейтронах. Большинство элементов в этой области энергий имеют большое сечение взаимодействия, которое изменяется по закону  $\sim 1/v$ . Исключением является, например, Cd, который для тепловых нейтронов является эффективным поглотителем.

По характеру взаимодействия нейтронов с ядрами ядерные реакции делятся на две группы. К первой относятся ядерные реакции, сечение которых наиболее велико в области тепловых нейтронов (радиационный захват и деление ядер). Ко второй – реакции, происходящие при энергии нейтронов, превышающей пороговую энергию. К пороговым реакциям относятся реакции с выходом заряженных частиц, неупругого рассеяния, эмиссии нейтронов и реакции деления. Реакции второй группы, как правило, происходят с поглощением энергии и имеют заметное сечение только при облучении быстрыми нейтронами.

Поскольку радионуклиды, образующиеся в реакциях  $(n, p)$ ,  $(n, \gamma)$ ,  $(n, \alpha)$ , являются нейтронно-избыточными, они переходят в устойчивое состояние путём  $\beta$ -распада. Исключение составляет небольшое число ядер, которые распадаются путем  $k$ -захвата или  $\beta^+$ -распада. При пороговых реакциях типа  $(n, 2n)$ , происходящих при энергии нейтронов 6–14 МэВ, образуются нейтронно-дефицитные изотопы. Если они активны, то распадаются путём  $\beta^+$ -распада. Подавляющее число радионуклидов являются  $\gamma$ -излучателями.

Нейтронно-активационный анализ применяется в трёх разновидностях: на тепловых нейтронах, на резонансных нейтронах и на быстрых нейтронах.

*Активационный анализ на тепловых нейтронах* является наиболее распространенным методом. Это объясняется рядом причин:

- на большинстве ядер элементов идёт только одна реакция  $(n, \gamma)$ , в результате которой образуются изотопы исходного элемента и число радиоизотопов в сложной пробе ограничено;
- отсутствуют реакции, связанные с изменением  $Z$ , а это исключает взаимные помехи элементов в анализе;
- большинство радиоизотопов испытывают  $\beta$ -распад, сопровождающийся  $\gamma$ -излучением, при этом индивидуальность схем распада выше, чем у других методов;
- по реакции  $(n, \gamma)$  происходит образование радиоизотопов у подавляющего числа элементов, что придаёт методу универсальность;
- аналитическое определение возможно не только по излучению радиоизотопов, но и по мгновенному  $\gamma$ -излучению радиационного захвата, а это расширяет возможности метода;
- сечение реакции радиационного захвата имеет достаточно высокие значения;
- имеется широкий набор источников тепловых нейтронов.

Для приближенных оценок при анализе используется уравнение активации для моноэнергетических нейтронов. Реальный спектр тепловых нейтронов усложняет уравнение активации. Известно, что потоки тепловых нейтронов, полученные замедлением быстрых, обычно сопровождаются потоками резонансных нейтронов. Они также дают вклад в активацию, величину которой необходимо учитывать. Такой учет выполняется обычно с помощью резонансного интеграла (см. раздел 4.2.4). Для определения отношения плотности потока резонансных и тепловых нейтронов достаточно определить кадмиевое отношение.

*Активационный анализ на резонансных нейтронах* базируется в основном на реакции  $(n, \gamma)$ . Особенности этого метода связаны со спецификой облучения и взаимодействия. Как уже упоминалось, у многих изотопов сечение взаимодействия нейтронов  $\sim 1/v$ . Но у ряда элементов наблюдается резонансное поглощение. Это обстоятельство эффективно используется при

активационном анализе. Однако отсутствие нейтронных источников с плавной регулировкой энергии мешает более широкому использованию этого метода.

Потоки тепловых и резонансных нейтронов формируются на базе потоков быстрых нейтронов. Потоки резонансных нейтронов имеют сплошное энергетическое распределение, а плотность потока изменяется по закону  $\sim 1/E_n$ . Это приводит к более интенсивной активации элементов, у которых резонансные пики расположены в низкоэнергетической области. Воздействовать на избирательность активации можно нейтронными фильтрами, которые видоизменяют спектр.

Облучение резонансными нейтронами применяется для повышения избирательности. Это облучение сокращает круг определяемых элементов. В этом случае более сложна методика облучений. Этот метод наиболее эффективен для идентификации элементов, имеющих чётко выраженные резонансы.

Активационный анализ на резонансных нейтронах реализуется тремя вариантами. Облучение с нерезонансными фильтрами применяется для подавления тепловой компоненты. Наиболее эффективным является кадмиевый фильтр, слой которого 0,5–1,0 мм пропускает только около  $4 \cdot 10^{-4}$  первичного потока тепловых нейтронов. Применение кадмиевого фильтра уменьшают удельную активность элементов в несколько раз, что повышает избирательность анализа элементов с высокими значениями резонансных интегралов. Иногда в качестве материала фильтра используется бор, который имеет высокое сечение поглощения медленных нейтронов. Наиболее часто применяется композиция бора и кадмия.

Избирательность анализа можно повысить, если в дополнение к кадмиевому фильтру ввести резонансный поглотитель. Это явление можно использовать либо для подавления активности мешающего компонента, либо для получения количественных характеристик при использовании разностного метода. Разновидностью метода резонансного активационного анализа является анализ по времени замедления нейтронов.

*Активационный анализ на быстрых нейтронах* проводится при малых сечениях реакции  $(n, \gamma)$  и энергиях нейтронов, превышающих 0,5 МэВ. Основную роль играют пороговые реакции  $(n, p)$ ,  $(n, \alpha)$ ,  $(n, 2n)$ ,  $(n, n^*)$ . Сечение реакций на быстрых нейтронах невелико и для большинства элементов составляет величину порядка 0,01–1,0 барн. Более слабое взаимодействие быстрых нейтронов по сравнению с тепловыми, приводят к двум последствиям: падает чувствительность метода и уменьшается влияние компонентов пробы на поток нейтронов. При облучении быстрыми нейтронами активируется подавляющее количество элементов, но эффективно применяться этот метод может только тогда, когда активация тепловыми нейтронами незначительна.

Взаимодействие быстрых нейтронов может протекать по нескольким каналам, которые часто связаны с изменением заряда ядер, чего не наблюдается при активационном анализе на тепловых нейтронах. Это обстоятельство с одной стороны облегчает подбор реакций, с другой создаёт дополнительные помехи при идентификации соседних элементов. Учитывая пороговый характер многих реакций по различным каналам и значительное количество конкурирующих реакций, можно исключить мешающие реакции выбором энергии.

#### **Фотоактивационный анализ**

Фотоактивационный анализ основан на взаимодействии высокоэнергетических гамма-квантов (с энергией более 1 МэВ) с ядрами определяемых элементов. При этом возможны следующие основные процессы: переход ядра на более возбуждённый энергетический уровень; ядерные реакции типа  $(\gamma, n)$ ,  $(\gamma, p)$ ,  $(\gamma, \alpha)$  и другие.

По энергетическому спектру  $\gamma$ -источники делятся на линейчатые и сплошные. Моноэнергетические кванты определяются переходами между уровнями ядер. Недостатками являются низкая энергия, невысокая интенсивность и невозможность регулирования энергии. Отсутствие радиоизотопных источников с необходимыми параметрами привело к использованию тормозного излучения ускорителей. Эти источники имеют параметры по энергии и интенсивности, перекрывающие все требования фотоактивационного анализа.

Реальный спектр тормозного излучения в пробе зависит от многих факторов. Они делают невозможным применение абсолютного метода, поэтому применяются только сравнительные



методы анализов. Активно используется высокий выход фотонейтронов при облучении средних и тяжелых ядер.

Методы фотоактивационного анализа подразделяются на фотонейтронный метод, метод фотовозбуждения изомерных уровней и гамма-активационный метод.

#### **Активационный анализ с помощью заряженных частиц**

Активационный анализ с помощью заряженных частиц нашёл применение в аналитической практике ряда сфер деятельности. Известно, что процессы взаимодействия заряженных частиц с ядрами разнообразны и многофункциональны. Тем не менее, они имеют некоторые общие закономерности:

- наличие порога реакции, который в основном связан с кулоновским барьером, однако этот порог размывается туннельным эффектом;
- качественно похожи функции возбуждения ядер от энергии заряженных частиц;
- значительное влияние на результаты анализа оказывает взаимодействие заряженных частиц с электронными оболочками определяемых атомов;
- вероятность протекания ядерных реакций по различным каналам затрудняет идентификацию элементов.

Учитывая перечисленные особенности, следует отметить, что практически во всех случаях АА на заряженных частицах имеет меньшие сечения взаимодействия и худшие характеристики по сравнению с другими видами активационных анализов.

В качестве источников частиц могут быть использованы радиоизотопы (например,  $^{210}\text{Po}$  и  $^{241}\text{Am}$ ), но чаще используются ускорители, которые позволяют получать для облучения частицы больших энергий. Наиболее часто используется облучение и реакции взаимодействия ядер с протонами, дейтонами, ядрами трития,  $^3\text{He}$  и альфа-частицами.

#### **NS4.6.2 Чувствительность активационного анализа**

Рассмотрению чувствительности активационного анализа посвящено значительное число специальных и особенно прикладных исследований, в результате которых показана его принадлежность к самым чувствительным методам. Однако требования науки и техники к определению крайне низких содержаний компонентов в различных объектах продолжают расти, что заставляет постоянно развивать техническую базу и совершенствовать технику уже существующих методов, а также искать принципиально новые способы анализа. Отсюда естественным образом вытекает необходимость рассмотрения достигнутого уровня чувствительности наиболее перспективных активационных методов и возможных путей дальнейшего прогресса в этом направлении.

Процедура активационного определения четко распадается на две основные стадии: активацию и измерение. Поскольку они следуют друг за другом, выполняются с помощью специальных устройств и в значительной степени определяются разными факторами, то их влияние на чувствительность определения можно рассматривать отдельно.

#### **Чувствительности при активации**

Стадия активации в общем виде может быть представлена последовательностью процессов, показанных на рис. 4.6.2.

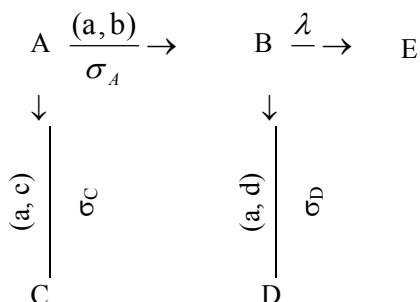


Рис. 4.6.2. Схема ядерных процессов, связанных с активацией

Согласно представленной схеме, взаимодействие активирующего излучения с изотопом А определяемого элемента, приводит к образованию аналитического радиоизотопа В, который в процессе радиоактивного распада переходит в продукт Е. Кроме того, изотоп А может иметь несколько каналов ядерных реакций с образованием ряда продуктов, объединенных под общим символом С. С другой стороны, радиоизотоп В также может взаимодействовать с активирующим излучением, образуя продукт D. На практике сочетание различных процессов может быть более сложным, однако такая схема является наиболее распространенной и поэтому рассматривается в данном разделе курса.

Максимальная чувствительность аналитической процедуры достигается тогда, когда обеспечиваются условия для перевода наибольшей доли ядер А в аналитически активное состояние. Применительно к активационным методам эта доля, то есть отношение  $N_B / N_{A_0}$ , в зависимости от ядерно-физических констант и условий облучения меняется согласно соотношению:

$$\frac{N_B}{N_{A_0}} = \frac{\Phi \sigma_A}{(\lambda + \Phi \sigma_B - \Phi \sigma_{AC})} \left[ 1 - e^{-(\lambda + \Phi \sigma_B - \Phi \sigma_{AC}) t_{обл.}} \right] e^{-\Phi \sigma_{AC} t_{обл.}}, \quad (4.6.7)$$

где  $N_B$  – число ядер В к моменту времени  $t_{обл.}$ ;

$N_{A_0}$  – исходное число ядер А;

$$\sigma_{AC} = \sigma_A + \sigma_C.$$

При облучении тепловыми нейтронами, когда для ядер А возможна только одна реакция  $(n, \gamma)$ , имеем место ситуация  $\sigma_C = 0$ . Следует отметить, что оценка отношения  $N_B / N_{A_0}$  при  $\lambda = \Phi \sigma_{AC} - \Phi \sigma_B$  требует особого подхода.

Согласно уравнению 4.6.7, при постоянной плотности потока отношение  $N_B / N_{A_0}$  для аналитического изотопа сначала растет с увеличением длительности облучения, достигает максимального значения и затем падает из-за выгорания изотопа А (рис. 4.6.3).

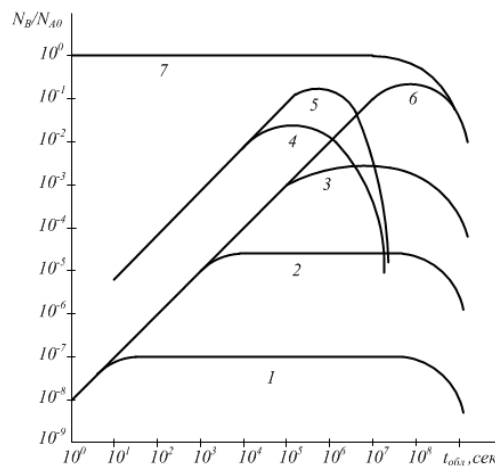


Рис. 4.6.3. Кривые накопления аналитического (1–6) и выгорания исходного (7) изотопов в зависимости от длительности облучения потоком тепловых нейтронов плотностью  $10^{14}$  (1, 2, 3, 6, 7) и  $10^{16}$  (4, 5) нейтрон/(см<sup>2</sup> с) при следующих параметрах:  $\sigma_A = 100$  барн (1–7);  $\sigma_B = 10$  барн (1–3, 5–7) и 1000 барн (4);  $T_{1/2} = 10$  с (1) б 1 ч. (2), 3 дня (3–5) и 1 год (6)

Если в ходе облучения соблюдаются условия  $\lambda \gg \Phi \sigma_{AC}$  и  $\lambda \gg \Phi \sigma_B$ , то пользуются простым правилом, что для достижения близкой к максимальной чувствительности достаточно облучение в течение  $5-10 T_{1/2}$ . При этом выгорание ядер А оказывается ничтожным и последний член в уравнении 4.6.7 практически равен 1, а само уравнение принимает наиболее простую форму, широко известную в виде уравнения активации.

Таблица 4.6.2. Некоторые предельные параметры активационных определений

Метод активации	$\Phi$ , частиц /(см <sup>2</sup> с)	$\sigma$ , барн	$\Phi\sigma$	$T_{1/2}=10$ с	$T_{1/2}=1$ ч.	$T_{1/2}=3$ дня	$T_{1/2}=1$ год
$\gamma$ – кванты (более 10 МэВ)	$10^{12}$	1	$10^{-12}$	$1,5 \cdot 10^{-11}$	$5,3 \cdot 10^{-9}$	$3,7 \cdot 10^{-7}$	$4,5 \cdot 10^{-6}$
Заряженные частицы	$10^{14}$	5	$5 \cdot 10^{-10}$	$7,2 \cdot 10^{-9}$	$2,6 \cdot 10^{-6}$	$1,8 \cdot 10^{-4}$	$2,3 \cdot 10^{-2}$
Тепловые нейтроны	$10^{14}$	$10^4$	$10^{-6}$	$1,5 \cdot 10^{-5}$	$5,3 \cdot 10^{-3}$	$\lambda \sim \Phi\sigma$	$\lambda \ll \Phi\sigma$
Быстрые нейтроны	$10^{10}$	2	$2,9 \cdot 10^{-11}$	$2,9 \cdot 10^{-12}$	$1,1 \cdot 10^{-9}$	$7,4 \cdot 10^{-8}$	$2,0 \cdot 10^{-6}$

В таблице 4.6.2 собраны и представлены предельные практически используемые параметры для различных случаев активационного анализа. Согласно приведенным данным, в большинстве активационных определений условия  $\lambda \gg \Phi\sigma_{AC}$  и  $\lambda \gg \Phi\sigma_B$  реализуются и, при достижении насыщения, имеет место равенство:

$$\frac{N_B}{N_{A0}} = \frac{\Phi\sigma_A}{\lambda} = \frac{\Phi\sigma_A T_{1/2}}{\ln 2}. \quad (4.6.8)$$

Полученное соотношение показывает, что при однократном облучении до насыщения в постоянном потоке доля аналитически активных ядер пропорциональна произведению параметров исходного и получающегося изотопов ( $\sigma_A T_{1/2}$ ). Это свидетельствует о значительной роли сечения и периода полураспада в формировании чувствительности активационных методов.

Особое место занимает облучение в мощных потоках тепловых нейтронов изотопов с высоким сечением активации, поскольку для случая достаточно долгоживущих радионуклидов в таких условиях достигается условие  $\lambda \leq \Phi\sigma_{AC}$  или  $\lambda \leq \Phi\sigma_B$ . Тогда оптимальное время облучения нельзя определять на основе отмеченного выше простого правила и следует пользоваться уравнением 4.6.7.

Основываясь на уравнении 4.6.7 и используя методы математического анализа, нетрудно получить выражение для оптимальной длительности облучения  $t_{\max}$ , при которой достигается максимум отношения  $N_B / N_{A0}$ :

$$t = \frac{\ln \frac{\lambda + \sigma_B \Phi}{\sigma_{AC} \Phi}}{\lambda + \sigma_B \Phi - \sigma_{AC} \Phi}. \quad (4.6.9)$$

Анализ уравнений 4.6.7 и 4.6.8 приводит к выводу, что повышение плотности потока активирующего излучения весьма благоприятно для аналитических характеристик любого активационного метода, поскольку при этом сокращается длительность облучения до получения максимума отношения  $N_B / N_{A0}$  с одновременным ростом самого отношения.

К сожалению, практической реализации столь заманчивой перспективы в обозримом будущем не предвидится. Прежде всего, отсутствуют технические возможности превышения доступных в настоящее время плотностей потоков на несколько порядков величины. С другой стороны, не следует забывать о пропорциональном росте активности основы, что может создать значительные затруднения при обработке облученной пробы.

Для облучений быстрыми нейтронами и жесткими квантами реально ожидать повышения предельных потоков на 1–2 порядка с соответствующим уменьшением порога определения. Однако даже при более значительном увеличении плотности для этих методов будут сохраняться условия  $\lambda \gg \Phi\sigma_{AC}$  и  $\lambda \gg \Phi\sigma_B$ . При активации заряженными частицами

чувствительность метода ограничивается не плотностью потока активирующего излучения, а мощным выделением тепла в анализируемой пробе при облучении, поэтому дальнейший прогресс этого метода скорее будет связан с совершенствованием способов отвода тепла от пробы.

Что касается потоков тепловых нейтронов, то в перспективе ожидается достижение плотностей порядка  $2-3 \cdot 10^{16}$  нейтрон/  $(\text{см}^2 \cdot \text{сек})$ . Однако это будут, видимо, уникальные установки.

Следовательно, для ряда методов активационного анализа в принципе можно ожидать в будущем некоторого повышения чувствительности за счет совершенствования источников активирующего излучения, но на этом пути возникают значительные трудности технического и методического характера. Поэтому параметры, приведенные в табл. 4.6.2, еще длительное время будут предельными и будут задавать чувствительность активационных определений на стадии облучения.

Как было показано ранее, наиболее высокое значение отношения  $N_B / N_{A0}$  достигается для долгоживущих радиоизотопов, что соответственно требует длительных облучений. Однако реальная длительность облучения имеет предел, связанный с условиями работы источника активирующего излучения и анализа. Так, длительные облучения до нескольких недель могут проводиться в реакторах. С другой стороны, длительные облучения более нескольких часов на ускорителях технически трудны и экономически нецелесообразны. Как правило, нежелателен и значительный разрыв между началом и концом анализа. Однако ограничение длительности облучения соответственно снижает предельную чувствительность метода.

Стадии активации и измерения обычно разделены некоторым интервалом времени  $t_{\text{расп}}$ , в течение которого происходит уменьшение числа ядер аналитического радиоизотопа. Поэтому необходимо стремиться к минимальной величине задержки по отношению к периоду полураспада радиоизотопа ( $t_{\text{расп}} \ll T_{1/2}$ ).

Для инструментального варианта активационного анализа минимальная длительность задержки определяется скоростью транспортировки пробы к измерительной установке и составляет доли секунды. Однако часто для повышения избирательности инструментального анализа возникает необходимость специально выдерживать пробу перед измерением.

В радиохимическом варианте нужны определенные затраты времени на выполнение операций разделения, при этом задержка неблагоприятным образом сказывается на чувствительности определения по короткоживущим изотопам.

На стадии измерения требуется зарегистрировать предельно возможное число ядер, находящихся в аналитически активном состоянии. Поэтому для активационных методов длительность измерения должна определяться по тому же принципу, что и длительность облучения ( $t_{\text{изм}} \geq 5-10 T_{1/2}$ ). Однако из-за ряда факторов практическая длительность измерения не превышает 10 ч.

Тогда, если пренебречь возможной задержкой, доля ядер, давших вклад в аналитический сигнал за время измерения, будет равна:

$$\frac{N_B^*}{N} = \frac{N_B}{N_{A0}} (1 - e^{-\lambda t_{\text{изм}}}), \quad (4.6.10)$$

где  $N_B^*$  – число ядер, претерпевших распад за время измерения. Эту зависимость для конкретных условий иллюстрируют кривые рис. 4.6.4.

Из приведенных выше соотношений следует, что для определений в условиях ограниченной длительности облучения и измерения (соответственно не более 6 дней и 10 ч) наибольшую чувствительность обеспечивают среднеживущие радиоизотопы ( $1 \text{ ч} \leq T_{1/2} \leq 2-3 \text{ дня}$ ). Правда, при определениях по короткоживущим изотопам может быть использован циклический анализ, то есть последовательность из нескольких циклов облучение – измерение с накоплением числа отсчетов. Однако такой подход возможен только на инструментальной основе, то есть при сохранении целостности пробы. Методика циклического анализа более сложна, а число циклов ограничено (не более 10). Поскольку циклический анализ применяется

для определений только по радиоизотопам с периодом полураспада менее 60 с, с его помощью не удастся приблизиться к чувствительности определений по среднеживущим изотопам (конечно, при других равных параметрах).

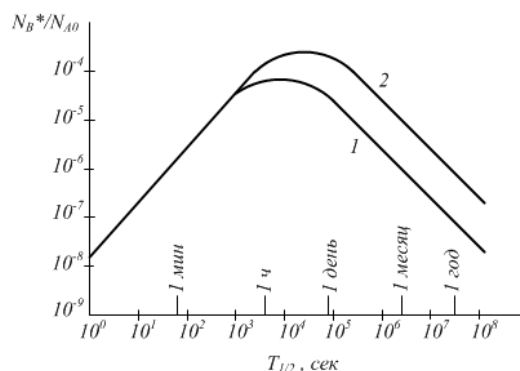


Рис. 4.6.4. Доля ядер, которые дают вклад в аналитический сигнал при следующих условиях:  $\Phi = 10^{14}$  нейтрон/(см<sup>2</sup> с);  $\sigma_A = 10\sigma_B = 100$  барн;  $t_{обл} = 6$  дней;  $t_{изм} = 1$  ч.(1) и 10 ч.(2)

На стадии измерения чувствительность определяется возможностью получения надежной информации при регистрации слабого аналитического сигнала обычно в присутствии помех, причины которых могут быть весьма разнообразны. В случае радиометрических методов минимальное число распадов ядер аналитического радиоизотопа, которое представляет предел обнаружения, зависит от параметров детектора излучения и условия измерения.

Между выходным сигналом (числом отсчетов) и числом распадов, которые совершились за период измерения, существует связь типа:

$$N_{отсчет} = k_{счет} N_B^* \quad (4.6.11)$$

где  $k_{счет}$  – коэффициент счетности;

$N_{отсчет}$  – число отсчетов измерительного устройства.

В свою очередь коэффициент  $k_{счет}$  представляет собой произведение целого ряда параметров: эффективности детектора, геометрии системы проба – детектор, поглощения и рассеяния излучения в веществе пробы и вспомогательных материалах, выхода излучения, химического выхода. Значительное влияние на предел обнаружения оказывают фон измерительного устройства и интерференция со стороны других радиоизотопов (см. далее подраздел «Предел обнаружения»). Показано, что в сопоставимых условиях с помощью низкофонового 4π бета-счетчика можно обнаружить на два порядка меньшие количества элементов, чем с помощью сцинтилляционного гамма-спектрометра или торцового бета-счетчика. По-видимому, наибольшую чувствительность регистрации излучения могут дать 4π бета-счетчики с экраном антисовпадений, которые обладают низким фоном (около 1 имп/мин) и высокой эффективностью (около 0,5–1). Однако применение этого детектора требует трудоемкого радиохимического выделения с высоким фактором очистки и сложной процедуры подготовки препарата к измерению.

Для сравнения чувствительности радиохимического и метода инструментального НАА с Ge(Li) детектором было сделано предположение о том, что порогом количественного определения является сигнал, измеряемый с 25%-ной относительной погрешностью. Тогда, принимая фон установки постоянным и хорошо известным из предшествующих опытов, можно рассчитать порог определения (см. далее раздел «Порог обнаружения»). Оценки порогов определения для нескольких элементов при облучении тепловыми нейтронами приведены в табл. 4.6.3.

Полученные оценки показывают превосходство радиохимического подхода перед инструментальным в плане чувствительности определения. Однако следует помнить, что сопоставление сделано в некоторых идеализированных условиях, которые предполагают

отсутствие помех со стороны каких-либо других компонентов анализируемой пробы. На практике же приходится сталкиваться с затруднениями, которые обусловлены либо протеканием интерферирующих реакций, либо влиянием излучения других радиоизотопов на измерение активности аналитического радиоизотопа.

Таблица 4.6.3. Порог определения ряда элементов с 25% относительной погрешностью активационного анализа на тепловых нейтронах

Элемент	Изотоп	$T_{1/2}$	$\sigma_{акт}$ , барн	$E_{\gamma}$ , МэВ (выход, %)	$N_B^*$ , распад/г	Порог определения, г	
						4 $\pi$ бета-счетчик**	Ge(Li) спектрометр***
V	$^{51}\text{V}$	3,8 мин.	4,5	1,43 (99)	$1,3 \cdot 10^{15}$	–	$7 \cdot 10^{-9}$
Mn	$^{56}\text{Mn}$	2,6 ч	13	0,85 (99)	$1,1 \cdot 10^{17}$	$7 \cdot 10^{-16}$	$7 \cdot 10^{-13}$
As	$^{76}\text{As}$	1,1 дня	6,7	0,56 (38)	$1,7 \cdot 10^{17}$	$6 \cdot 10^{-16}$	$7 \cdot 10^{-13}$
P	$^{31}\text{P}$	14,5 дня	0,19	–	$3,5 \cdot 10^{15}$	$3 \cdot 10^{-16}$	–
Cs	$^{134}\text{Cs}$	2,1 года	30	0,61 (95)	$2,7 \cdot 10^{15}$	$4 \cdot 10^{-16}$	$7 \cdot 10^{-11}$

\*) – плотность потока  $10^{14}$  нейтрон/(см<sup>2</sup> с), длительность облучения до 6 дней, измерения до 10 ч;

\*\*\*) – эффективность составляет 0,5 и фон 1 имп./мин., длительность задержки 1 ч;

\*\*\*\*) – детектор объемом 43 см<sup>3</sup> данные по эффективности и фону при защите из 10 см свинца приняты по литературным данным.

В отношении интерферирующих реакций можно заметить, что их влияние сказывается сильнее в случае применения высокочувствительного, но неизбирательного конечного метода регистрации. Это легко понять, поскольку при высокой чувствительности начинает проявляться действие весьма слабых эффектов (интерферирующие реакции с очень малым сечением и протекающие на элементах с низкой концентрацией). С другой стороны, интегральное измерение не позволяет выделить излучение аналитического радиоизотопа в присутствии других радиоизотопов того же самого элемента, часть из которых может образоваться по интерферирующим реакциям из соседних элементов. Естественно, что эти затруднения, прежде всего, относятся к радиохимическому варианту.

В свою очередь, чувствительность инструментального варианта подвержена сильному влиянию со стороны других радиоактивных компонентов пробы. Прежде всего, это влияние осуществляется через комптоновское распределение. Однако не менее важным фактором может оказаться и временная разрешающая способность анализирующей аппаратуры, что ограничивает суммарную активность пробы. Поэтому часто реальная чувствительность инструментального варианта оказывается на несколько порядков ниже предельно возможной.

Следует заметить, что в большинстве практических применений для определения малых концентраций рабочая область активационного анализа находится между  $10^{-6}$ – $10^{-11}$  г ( $10^{-4}$ – $10^{-9}$  %). Только в отдельных случаях был достигнут предел порядка  $10^{-11}$ – $10^{-13}$  г. Следовательно, приведенные в табл. 4.6.3 оценки чувствительности определения указывают на некоторые, еще не реализованные потенциальные возможности метода. И этот прогресс может осуществляться преимущественно с применением достаточно специфичного и тонкого радиохимического выделения, которое предшествует длительному измерению на высокочувствительной установке.

#### Чувствительность активационного анализа на тепловых нейтронах

Наиболее высокую абсолютную и концентрационную чувствительность обеспечивает облучение тепловыми нейтронами реактора. Это результат благоприятного сочетания ряда факторов: высоких сечений и потоков, возможности облучения достаточно больших навесок в течение длительного времени (до нескольких недель). Некоторое представление о возможностях метода можно получить из табл.4.6.4, которая показывает, что в указанных условиях для 52 элементов чувствительность превышает  $10^9$  г. При увеличении потока нейтронов и применении эффективных методов регистрации еще более 10 элементов могут перейти этот предел.

Активационный анализ на тепловых нейтронах неблагоприятен для легких элементов: H, He, C, N, O, Ne. Кроме того, еще два легких элемента (Li и B) из-за очень короткого периода полураспада аналитического радионуклида, требуют специальной методики анализа. Сравнительно низкую чувствительность облучения тепловыми нейтронами имеет еще для шести элементов: F, S, Ca, Fe, Zr, Pb.

Таблица 4.6.4. Чувствительность активационного анализа на тепловых нейтронах\*

Элемент	Масса**, г
Eu, Dy	Менее $10^{-12}$
Mn, Co, Rh, Ag, In, Sm, Ho, Lu, Re, Ir, Au	$10^{-12}$ – $10^{-11}$
Na, Sc, V, Cu, Ga, As, Br, Kr, Pd, Sb, I, La, Pr, Tb, Tm, Yb, W, Hg, Th	$10^{-11}$ – $10^{-10}$
Al, Cl, Ar, K, Cr, Zn, Ge, Se, Rb, Sr, Y, Nb, Cd, Cs, Gd, Er, Hf, Ta, Os, U	$10^{-10}$ – $10^{-9}$
P, Ni, Mo, Ru, Sn, Te, Xe, Ba, Ce, Nd, Pt, Tl	$10^{-9}$ – $10^{-8}$
Mg, Si, Ca, Ti, Bi	$10^{-8}$ – $10^{-7}$
S, Fe, Zr	$10^{-7}$ – $10^{-6}$
Pb	$10^{-6}$

\*) –  $\Phi=1 \cdot 10^{13}$  нейтрон/(см<sup>2</sup> с),  $t_{обл}=150$  ч.;

\*\*) – при критерии 10 расп./с.

#### Чувствительность $\gamma$ -активационного анализа

В дополнение к ранее отмеченным факторам, чувствительность активационного анализа зависит от максимальной энергии тормозного излучения. Для повышения концентрационной чувствительности можно применять большие навески. Длительность облучений не превышает нескольких часов.

Таблица 4.6.5. Чувствительность  $\gamma$ -активационного анализа

Элемент	Предел обнаружения, мкг*
C, P, Cu, Zn, Ga, Br, Rb, Ag, Sb, Pr	Менее 1
N, O, F, Mg, Cl, K, Sc, Fe, Se, Sr, Zr, Cd, Te, Ba, Sm, Ho, Hf	1–10
Al, Si, S, Ti, Cr, Ni, Ge, Mo, Ru, Pd, In, Sn, I, Cs, Ce, Nd, Gd, Tb, Er, Ta, Au, Hg	10–100
Na, As, Y, Nb, Rh, Eu, Tm, W, Re, Os, Ir, Pt, Tl, Pb	100–1000
Ca, V, Mn, Yb	Более 1000
H, Li, Be, B, La, Lu, Bi	Не активируется

\*) – рассчитан по интенсивности пиков полного поглощения, измеренных с помощью гамма-спектрометра с кристаллом NaI(Tl) 70·40 мм. Время облучения не более 30 мин, время измерения не более 10 мин.

Распределение элементов по чувствительности при использовании бетатрона с внутрикамерным облучением показано в табл.4.6.5. Эти оценки получены при энергии тормозного излучения 26,3 МэВ и средней мощности дозы излучения  $1,1 \cdot 10^4$  Р/мин. Поскольку средняя навеска в данных экспериментальных условиях составляет 2 г, то предельная концентрационная чувствительность достигает около  $10^{-5}$  %. Применение мощных ускорителей с более высокой максимальной энергией, увеличение длительности облучения и измерения могут повысить чувствительность на 2–3 порядка. Это приведет к снижению предела обнаружения примерно до  $10^{-7}$ – $10^{-8}$  %.

#### Чувствительность активационного анализа на заряженных частицах

При активации заряженными частицами появляется новый фактор, влияющий на концентрационную чувствительность. Пропорционально увеличению пробега частиц в

веществе пробы с ростом энергии и порядкового номера макрокомпонента повышается и чувствительность анализа по методу толстого слоя (рис. 4.6.5).

Поскольку активационный анализ на заряженных частицах находит основное применение для определения малых количеств легких элементов, то и оценки возможностей метода выполнены преимущественно для них. Показано, что для Be, B, C, N, O, F облучение разными типами заряженных частиц даёт предельные значения около  $10^{-7}$ – $10^{-8}$  %.

### Предел обнаружения

Во многих практических ситуациях, связанных с измерениями ядерных и радиоактивных материалов, в том числе и в активационном анализе, важно знать и уметь определять пределы обнаружения интересующих радионуклидов. Предел, известный как предел обнаружения, зависит от состава пробы, энергии излучения, расстояния между источником излучения и детектором, эффективности детектора и времени, доступного для проведения измерений (см. разделы 4.1, 4.2, 4.4, 4.5 курса).

Поскольку в активационном анализе сигналом, несущим количественную информацию, является ионизирующее излучение радиоактивных ядер, нижняя граница определяемых концентраций зависит от минимального числа распадов, которое может быть зарегистрировано с достаточной надежностью.

Определению чувствительности НАА посвящено много исследований, которые достаточно сложно сопоставимы из-за отсутствия общепринятой терминологии и различий в выборе критериев для оценки пределов обнаружения. Критический обзор проблемы сделан Х.Э.Гунне, Л.Л.Пелекис и Кури.

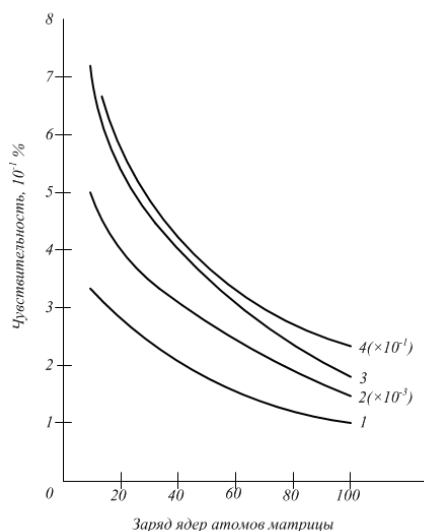


Рис. 4.6.5. Чувствительность определения кислорода в различных матрицах при облучении ионами  ${}^3\text{He}$  (10 МэВ) по реакциям: 1 –  ${}^{16}\text{O}({}^3\text{He}, p){}^{18}\text{F}$ ; 2 –  ${}^{16}\text{O}({}^3\text{He}, \alpha n){}^{14}\text{O}$ ; 3 –  ${}^{16}\text{O}({}^3\text{He}, \alpha){}^{15}\text{O}$ ; 4 –  ${}^{16}\text{O}({}^3\text{He}, 2\alpha){}^{11}\text{C}$ .

Для решения различных задач, связанных с оценкой возможностей аналитического метода для определения минимальных количеств веществ, вводятся три величины: критический предел обнаружения  $L_C$ , с помощью которого можно только принять решение о том, указывает ли полученный результат на присутствие определяемого компонента пробы; предел обнаружения  $L_D$  – служит границей уверенной регистрации элемента; порог определения  $L_Q$  – представляет значение, обеспечивающее уже достаточно точные количественные результаты.

Регистрация наблюдаемого сигнала, как правило, проводится в присутствии помех (фона), флуктуации которых и обуславливают пределы обнаружения. Для выборочного значения сигнала справедливо равенство:



$$a_c = a_{c+\phi} - a_\phi, \quad (4.6.12)$$

где

$a_c$  - выборочное значение сигнала;

$a_{c+\phi}$  - значение сигнал+фон;

$a_\phi$  - значение фонового сигнала в выбранной области.

При обнаружении сигнала возможны ошибки двух типов: принятие решения, что сигнал присутствует, когда его нет (ошибка первого рода); принятие решения, что сигнал отсутствует, когда он есть (ошибка второго рода). Если принять вероятность ошибки первого рода равной  $\alpha$ , а ошибки второго рода –  $\beta$ , то для величин  $L_C$  и  $L_D$  справедливы следующие зависимости:

$$L_C = k_\alpha s_0, \quad (4.6.13)$$

$$L_D = L_C + k_\beta s_D, \quad (4.6.14)$$

где  $k_\alpha$  и  $k_\beta$  - квантиль для вероятности  $(1-\alpha)$  и  $(1-\beta)$ ;

$s_0$  и  $s_D$  – среднее квадратичное отклонение чистого сигнала, истинное значение сигнала равняется соответственно 0 и  $L_D$ .

Оба предела ( $L_C$  и  $L_D$ ) непригодны с точки зрения количественных определений, когда нужен результат, близкий к истинному значению. Поскольку в этом случае погрешность должна быть малой частью определяемой величины, то порог определения должен быть вычислен по следующему соотношению:

$$L_Q = k_Q s_Q, \quad (4.6.15)$$

где  $k_Q = 1/s_{rQ}$  ( $s_{rQ}$  – требуемое относительное среднее квадратичное отклонение).

При измерениях радиоактивности, если сигнал достаточно велик, величина  $a_c$  представляет хорошее приближение для истинного значения (для случая нормального его распределения), а дисперсия сигнала вычисляется согласно равенству:

$$s_c^2 = s_{c+\phi}^2 + s_\phi^2 = (a_c + a_\phi) + \frac{a_\phi}{n}, \quad (4.6.16)$$

где  $n$  - число определений.

Тогда соответствующие выражения для величин  $L_C$ ,  $L_D$  и  $L_Q$  принимают вид:

$$L_C = k_\alpha s_0 = k_\alpha (a_\phi + s_\phi^2)^{1/2}, \quad (4.6.17)$$

$$L_D = L_C + \frac{k_\beta^2}{2} \left\{ 1 + \left[ 1 + \frac{4L_C}{k_\beta^2} + \frac{4L_C^2}{k_\alpha^2 k_\beta^2} \right]^{1/2} \right\}, \quad (4.6.18)$$

$$L_Q = \frac{k_Q^2}{2} \left\{ 1 + \left[ 1 + \frac{4s_0^2}{k_Q^2} \right]^{1/2} \right\}. \quad (4.6.19)$$

Для практических оценок удобно пользоваться выражениями, полученными для случая  $\alpha = \beta = 0,05$  и  $k_Q = 10$  приведенных в табл. 4.6.6.

В приведенных выражениях для различных пределов связь с длительностью измерения выражена в неявной форме. Чтобы найти зависимость чувствительности от времени, необходимо перейти от интегральных величин  $L_C$ ,  $L_D$  и  $L_Q$  и  $a_\phi$  к скоростям счета. Тогда, например, для предела  $L_D/t_{изм.} = l_D$  в случае высокого фона получается следующее равенство:

$$l_D = \frac{3,29\sqrt{n_\phi t_{изм.}}}{t_{изм.}} = 3,29\sqrt{\frac{n_\phi}{t_{изм.}}} \quad (4.6.20)$$

Таблица 4.6.6. Формулы для оценки  $L_C$ ,  $L_D$  и  $L_Q$  в различных экспериментальных условиях.

Условия измерения	Предельные величины, отсчеты		
	$L_C$	$L_D$	$L_Q$
Парные наблюдения* ( $s_\phi^2 = a_\phi$ )	$2,33\sqrt{a_\phi}$	$2,71 + 4,65\sqrt{a_\phi}$	$50\left\{1 + \left[1 + \frac{a_\phi}{12,5}\right]^{1/2}\right\}$
Точно определенный фон** ( $s_\phi^2 = 0$ )	$1,64\sqrt{a_\phi}$	$2,71 + 3,29\sqrt{a_\phi}$	$50\left\{1 + \left[1 + \frac{a_\phi}{25}\right]^{1/2}\right\}$
Нулевой фон ( $a_\phi = 0$ )	0	2,71	100
Высокий фон*** ( $a_\phi \geq 0$ )	$1,64\sqrt{a_\phi}$ ( $a_\phi \geq 0$ )	$3,29\sqrt{a_\phi}$ ( $a_\phi \geq 67$ )	$10\sqrt{a_\phi}$ ( $a_\phi \geq 2500$ )

\*) – длительности измерений сигнала и фона равны;

\*\*) – величина  $a_\phi$  получена как среднее из многократных определений (длительные измерения фона);

\*\*\*) – большое число отсчетов фона за время измерения сигнала при точно определенном фоне.

Таким образом, предельная скорость счета долгоживущего изотопа уменьшается с увеличением длительности измерения пропорционально  $\sqrt{t_{изм.}}$ .

Однако для короткоживущих изотопов имеется оптимальное время измерения, когда соответствующие пределы оказываются минимальными. Оптимальное время измерения зависит от уровня фона прибора  $n_\phi$ . Когда это значение достаточно велико, оптимальное время составляет примерно два периода полураспада измеряемого радиоизотопа. Если фон прибора мал, то оптимальная длительность измерения увеличивается.

В активационном анализе очень часты ситуации, когда помеха состоит не только из фона прибора, но и вклада некоторых радиоактивных компонентов облученной пробы, излучение которых регистрируется (частично или полностью) вместе с излучением исследуемой компоненты. Если вклад интерферирующего излучения может быть оценен, то при расчете соответствующих пределов необходимо использовать величину:

$$a_{\phi+u} = a_\phi + a_u, \quad (4.6.21)$$

где  $a_u$  - число отсчетов интерферирующего излучения за время регистрации. Таким образом, появление интерферирующего излучения равносильно увеличению фона измерительной установки и, следовательно, связано с потерей чувствительности.

Рассмотренные выше выражения дают соответствующие пределы в виде числа отсчетов или скорости счета. Однако для аналитических определений эти величины представляют интерес только тогда, когда они выражены в единицах массы или числе атомов. Предел обнаружения, выраженный в весовых категориях с учетом интерферирующего излучения ( $k_\alpha = k_\beta$ ) может быть определен с помощью выражения:

$$m_D = \frac{k_\alpha^2 + 2k_\alpha [a_\phi + s_\phi^2 + a_u + s_u^2]^{1/2}}{6,02 \times 10^{23} M^{-1} \Phi \sigma_{акт} \theta \varepsilon \lambda^{-1} (1 - e^{-\lambda_{обв.}})(1 - e^{-\lambda_{изм.}}) e^{-\lambda_{расп.}}}, \quad (4.6.22)$$

Если помеху измерениям оказывают несколько радиоизотопов, то величины  $a_u$  и  $s_u^2$  нужно соответственно заменить на  $\sum a_u$  и  $\sum s_u^2$ . Когда время измерения фона ( $s_\phi^2 = a_\phi$ ) и мешающего излучения равно времени измерения сигнала, то корень квадратный в числителе равен  $[2a_\phi + 2a_u]^{1/2}$ . Когда  $a_\phi$  и  $a_u$  получены как среднее из многократных измерений ( $s_\phi^2 \ll a_\phi$  и  $s_u^2 \ll a_u$ ), этот корень равен  $[a_\phi + a_u]^{1/2}$ .

Практически интересный предельный случай имеет место, когда интенсивность интерферирующего излучения велика и справедливы условия  $k_\alpha^2 \ll \sqrt{a_u}$  и  $a_\phi \ll a_u$ :

$$m_D = \frac{2k_\alpha \left[ 6,02 \times 10^{23} 2\Phi m_u \sigma_{акт.у.} \theta_u M_u^{-1} \varepsilon_u \lambda_u^{-1} (1 - e^{-\lambda_u t_{обл}}) (1 - e^{-\lambda_u t_{изм}}) e^{-\lambda_u t_{расп}} \right]^{1/2}}{6,02 \times 10^{23} \Phi \sigma_{акт} \theta M^{-1} \varepsilon \lambda^{-1} (1 - e^{-\lambda t_{обл}}) (1 - e^{-\lambda t_{изм}}) e^{-\lambda t_{расп}}} = k \sqrt{\frac{m_u}{\Phi}}. \quad (4.6.23)$$

Таким образом, в присутствии интерферирующего излучения чувствительность метода с увеличением плотности потока нейтронов растет только пропорционально  $\sqrt{\Phi}$ . Увеличение в пробе содержания интерферирующего элемента снижает чувствительность метода к определяемому элементу. Такая ситуация часто встречается в инструментальном анализе, когда не удается обеспечить необходимую избирательность определения.

#### NS4.7 РАЗРУШАЮЩИЙ АНАЛИЗ

Активное использование ядерных материалов (ЯМ) в мирных и военных технологиях потребовали создания систем аналитического контроля. Режим контроля должен обеспечить учет всего спектра материалов, начиная с сырьевых (природных) и заканчивая готовыми изделиями и отходами ядерных производств. Номенклатура ядерных материалов обширна: плутоний, уран, торий, их сплавы и соединения.

Аналитический контроль должен сопровождать технологические процессы, включая баланс и качество ЯМ. Кроме того, он должен гарантировать обеспечение ядерной и радиационной безопасности. На различных стадиях производства и обращения с ЯМ применяется широкий набор методов разрушающего и неразрушающего контроля. Неразрушающий контроль использует ядерно-физические методы, основанные на регистрации параметров полей собственного ионизирующего излучения (пассивные методы) или индуцированного излучения (активные методы). Неразрушающие методы не предполагают изменение анализируемых материалов на молекулярном или атомарном уровне. Эти методы обеспечивают дистанционный контроль ЯМ в технологических продуктах, коммуникациях и отходах.

Разрушающие методы анализа ЯМ используют химические, физико-химические и радиохимические процессы. Набор разрушающих методов достаточно обширен. По точности и чувствительности эти методы превосходят неразрушающие. Поэтому прецизионным разрушающим методам принадлежит ведущая роль в количественном учете ЯМ.

В качестве разрушающих методов анализа ЯМ могут быть использованы все известные методы, применяемые в аналитической практике. Любые аналитические методы основаны на получении и измерении аналитического сигнала, то есть любого проявления химических или физических свойств вещества, которое можно использовать для установления качественного состава анализируемого объекта и/или для количественной оценки содержащихся в них элементов или веществ. Анализируемым объектом может быть индивидуальное соединение в любом агрегатном состоянии, смесь соединений, природные объекты и так далее. Один и тот же элемент может находиться в образце в разных химических формах, поэтому в зависимости от поставленной задачи проводят соответствующий анализ образца. Определение элементного состава материальных объектов называют элементным анализом. В вещественном анализе определяют, в какой форме присутствует компонент в анализируемом объекте и каково содержание этих форм (например, плутоний (III), (IV), (V), (VI)). Изотопный анализ позволяет определить изотопный состав интересующего элемента. Обнаружение и определение химических соединений и их смесей на молекулярном уровне называют молекулярным анализом. Одним из видов молекулярного анализа химических соединений является структурный анализ, направленный на исследование пространственного атомного строения веществ, установление эмпирических формул, молекулярных масс и другое.

В зависимости от цели анализа различают качественный анализ и количественный анализ. Задачей первого является обнаружение и идентификация компонентов анализируемого образца, второго – определение их концентраций или масс.

Все существующие методы аналитической химии можно разделить на методы пробоотбора, разложения проб, разделения компонентов, обнаружения (идентификации) и определения. Наибольшее значение в аналитической химии имеют методы определения, которые основаны на зависимости между составом вещества и его свойствами. Аналитические методы определения столь же разнообразны, как и химические и физические свойства веществ, на которых они основаны. По происхождению аналитического сигнала все методы определения можно разделить на 2 группы: химические методы и инструментальные методы.

К химическим методам относятся титриметрические (объемные), основанные на определении объема реагента-титранта, гравиметрические (весовые), основанные на измерении массы одного из продуктов реакции, и газоволюметрические, в которых измеряют объем выделившегося газа. Эти аналитические методы называют классическими. Все эти методы базируются на использовании 4 типов химических реакций: кислотно-основных, окисления-восстановления, комплексообразования и осаждения. Критериями пригодности химической реакции, как основы аналитического метода, являются стехиометричность, полнота протекания,

быстрота протекания и возможность фиксирования точки эквивалентности. Аналитический сигнал, например, выделение газа или изменение окраски индикатора, как правило, фиксируют визуально. Классические методы уступают место инструментальным. Однако они отличаются высокой точностью: относительная погрешность определения редко превышает 0,1 – 0,2 %, тогда как погрешность многих инструментальных методов составляет 2 – 5 % относительных. Основная область применения гравиметрии и титриметрии – прецизионное определение больших и средних количеств веществ.

Таблица 4.7.1. Классификация инструментальных методов анализа

Группы методов	Методы определения
1. Электрохимические	1.1. Потенциометрия: – потенциометрическое титрование; – ионометрия.
	1.2. Кулонометрия: – амперостатическая (при постоянной силе тока); – потенциостатическая (при постоянном потенциале); – кулонометрическое титрование.
	1.3. Вольтамперометрические методы: – классическая полярография; – осциллографическая полярография; – импульсная полярография; – переменного-токовая полярография; – инверсионная вольтамперометрия; – амперометрическое титрование.
	1.4. Другие электрохимические методы: – кондуктометрия; – электрогравиметрия (электролитическое выделение); – высокочастотное титрование.
2. Спектроскопические	2.1. Атомная спектроскопия: – атомно-эмиссионная спектроскопия; – спектрофотометрия пламени; – атомно-абсорбционная спектроскопия; – атомно-флуоресцентная спектроскопия; – рентгеновская спектроскопия; – электронная спектроскопия.
	2.2. Молекулярная спектроскопия: – абсорбционная спектроскопия в ультрафиолетовой и видимой областях спектра; – инфракрасная спектроскопия и спектроскопия комбинационного рассеяния; – молекулярная люминесценция; – нефелометрия и турбодиметрия; – оптико-акустическая спектроскопия; – спектроскопия диффузного отражения; – термолинзовая (оптико-рефракционная) спектроскопия.
	2.3. Радиоспектроскопические методы: – спектроскопия ядерного магнитного резонанса (ЯМР); – спектроскопия электронного парамагнитного резонанса (ЭПР).
3. Масс-спектрометрические (рассматриваются в разделе 4.7.2)	
4. Методы анализа, основанные на измерениях радиоактивности	4.1. Радиоактивационный анализ. 4.2. Методы изотопного разбавления. 4.3. Методы, основанные на поглощении и рассеянии излучений. 4.4. Радиометрические методы. 4.5. Мёссбауэровская спектроскопия.
5. Термические	5.1. Термогравиметрия. 5.2. Термический анализ и дифференциально-термический анализ. 5.3. Термотитриметрия. 5.4. Другие методы (энтальпиметрия, дилатометрия, катарометрия).

Инструментальные методы представляют собой совокупность физических и физико-химических методов. В настоящее время отсутствует единая общепринятая классификация этих методов анализа, их деление на физико-химические и физические методы весьма условно. От классических методов их отличает очень низкий предел обнаружения, высокие экспрессность и избирательность, возможность одновременного определения десятков элементов в одной пробе; они позволяют проводить дистанционный анализ и автоматизировать как сами процессы анализа, так и технологические процессы. Общее число инструментальных методов анализа довольно велико – достигает нескольких десятков. В табл. 4.7.1 приведена общая классификация инструментальных методов анализа. Многие из указанных методов имеют несколько разновидностей, различающихся между собой принципиальными практическими особенностями, например, способами атомизации пробы, способами детектирования и регистрации аналитических сигналов и так далее.

Электрохимические методы анализа и исследования основаны на изучении и использовании процессов, протекающих на поверхности электрода или в приэлектродном слое. Любой электрический параметр (потенциал, сила тока, сопротивление и другие), функционально связанный с концентрацией определяемого компонента и поддающийся правильному измерению, может служить аналитическим сигналом.

Спектроскопические методы анализа являются наиболее многочисленными и часто применяемыми. Они основаны на способности атомов и молекул вещества испускать, поглощать или рассеивать электромагнитное излучение. С помощью спектроскопических методов решаются задачи атомного, изотопного, молекулярного, функционального (структурно-группового) и фазового анализа. Современная спектроскопия базируется на квантовой теории и понятии электромагнитного спектра. В табл. 4.7.1 приведены области электромагнитного излучения и их границы.

Таблица 4.7.2. Области излучений, используемые в спектральных методах

Название области	Границы длин волн		Границы частот, Гц	Волновое число, см <sup>-1</sup>
	в используемых единицах	в метрах		
Рентгеновская	10 <sup>-2</sup> – 10 <sup>2</sup> Å	10 <sup>-12</sup> – 10 <sup>-8</sup>	10 <sup>20</sup> – 10 <sup>16</sup>	
дальняя	УФ 200 – 400 нм	10 – 200 нм	10 <sup>16</sup> – 10 <sup>15</sup>	25000 – 13000
ближняя		200 – 400 нм	2·10 <sup>15</sup> – 7,5·10 <sup>14</sup>	
Видимая область	400 – 750 нм	4·10 <sup>-7</sup> – 7,5·10 <sup>-7</sup>	7,5·10 <sup>14</sup> – 4·10 <sup>14</sup>	
ближняя	ИК	0,75 – 2,5 м	4·10 <sup>14</sup> – 1,2·10 <sup>14</sup>	13000 – 4000
средняя		2,5 – 50 м	2,5·10 <sup>14</sup> – 6·10 <sup>12</sup>	4000 – 200
дальняя		50 – 1000 м	5·10 <sup>12</sup> – 10 <sup>11</sup>	200 – 10
Микроволновая	0,1 – 100 см	1·10 <sup>-3</sup> – 1	10 <sup>11</sup> – 10 <sup>8</sup>	10 – 10 <sup>-2</sup>
Радиоволновая	1 – 1000 м	1 – 1·10 <sup>-3</sup>	10 <sup>8</sup> – 10 <sup>5</sup>	–

Атомная спектроскопия – совокупность методов, основанных на преобразовании анализируемых проб в парообразное состояние отдельных свободных атомов (атомизация), концентрации которых затем измеряются спектроскопически по испусканию или поглощению лучистой энергии (АЭС – атомно-эмиссионная спектроскопия, ААС – атомно-абсорбционная спектроскопия, АФС – атомно-флуоресцентная спектроскопия, АИС – атомно-ионизационная спектроскопия). Молекулярная спектроскопия основана на поглощении электромагнитного излучения веществом или вторичном излучении: абсорбционная молекулярная спектроскопия (спектрофотометрия) в УФ и видимой областях спектра; люминесцентный анализ; инфракрасная (ИК) спектрофотометрия; спектроскопия комбинационного рассеяния (КР); лазерная спектроскопия. Радиоспектроскопические методы (ЯМР и ЭПР) используются в основном в исследовательских целях.

Масс-спектрометрический метод анализа основан на ионизации атомов и молекул изучаемого вещества и последующем разделении образующихся ионов в пространстве или во времени. Масс-спектрометрия в настоящее время является одним из основных методов получения информации о массах ядер и атомов и оценки распространенности изотопов в природе и в промышленных изделиях.

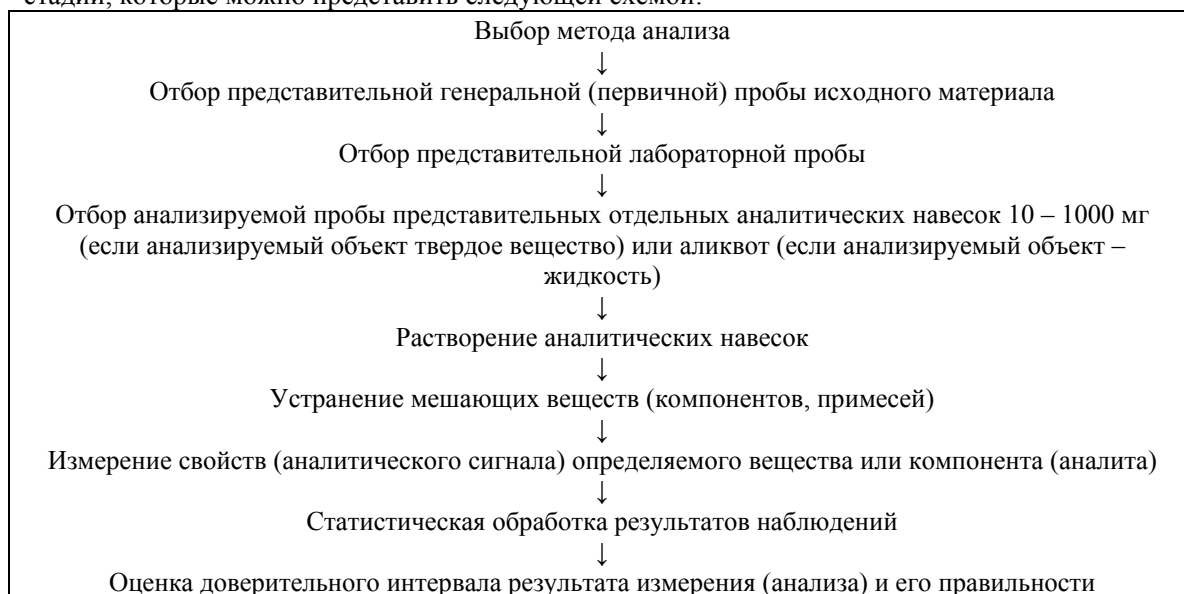
Из группы методов, основанных на радиоактивности, для определения ядерных материалов наиболее важными являются радиометрические методы.

Отдельно нужно выделить радиохимический анализ – это раздел аналитической химии, который включает совокупность методов выделения радионуклидов (осаждения, экстракции, хроматографии, дистилляции, электролитического осаждения и так далее) в радиохимически чистом состоянии из сложных образцов с последующим определением качественного состава и количественного содержания радиоактивных изотопов радиометрическими или другими аналитическими методами. Следует отметить, что основные законы распределения микрокомпонентов между любыми двумя фазами, на которых основаны методы их выделения, стали известны именно благодаря радиохимии. В отличие от собственно радиометрического анализа, имеющего целью определение содержания радиоактивных элементов только с помощью физических приборов, целью радиохимического анализа является нахождение содержания радиоактивных изотопов в исследуемых объектах с применением химических методов отделения и очистки. По этим причинам и с учетом радиоактивности ядерных материалов и многих продуктов их распада разрушающие аналитические методы их определения следует отнести к радиохимическим.

#### **4.7.1 Радиохимические методы**

Радиохимические методы составляют основу всех разрушающих методов анализа ядерных материалов. Все другие методы, например, масс-спектрометрия, альфа-спектрометрия, бета-радиометрия, анализ частиц и другие, связаны с радиохимией. Эта связь, как минимум, выражается в необходимости подготовки проб к анализам. Кроме того, очень часто современные методы исследований органично включают в себя тот или другой элемент разрушающего химического анализа, как часть методики измерений (см., например, раздел «Масс-спектрометрия»). Поэтому, является уместным рассмотреть в главе, посвященной методам разрушающего анализа, радиохимические методы, как их основу, а также изложить основные принципы пробоотбора и пробоподготовки в этом разделе.

Любое аналитическое исследование включает четыре основных этапа: пробоотбор; пробоподготовка; собственно анализ (измерение аналитического сигнала как функции содержания в пробе интересующих элементов); обработка результатов измерений. Точность разрушающего анализа определяется не только точностью метода, но также точностью и корректностью ряда последовательных операций. Общая погрешность анализа определяется погрешностью каждого этапа. Типичный количественный анализ включает последовательные стадии, которые можно представить следующей схемой:



В отдельных случаях из этой схемы могут быть исключены одна или несколько промежуточных операций.

Разрушающий анализ ядерных материалов имеет свои особенности. Вследствие радиоактивности и токсичности ядерных материалов, особенно плутония и трансплутониевых элементов, при работе с ними, в том числе и при проведении аналитических определений, необходимо применять специальное оборудование и приспособления для защиты от вредных воздействий. При работе с высокоактивными веществами применяют специальную защиту («горячие» камеры) и операции выполняют дистанционно. Но в большинстве случаев, при выполнении аналитических работ, используются небольшие количества материалов при низком уровне радиоактивности и поэтому, обычно, вполне достаточно применения защитных камер (боксов) с перчатками. Часто эти боксы монтируют в ряд таким образом, чтобы все аналитические операции можно было выполнять без изъятия пробы из них. Другой проблемой при работе с ЯМ является критичность (ядерная опасность). Собранные в одном месте делящиеся материалы, например, в виде остатков проб или отходов могут создать критическую массу, способную привести к возникновению цепной реакции деления. Поэтому в аналитических лабораториях необходимо тщательно контролировать массу используемых делящихся материалов.

### **Пробоотбор**

Методики пробоотбора варьируются от простого отбора проб погружением или зачерпыванием, до применения сложных механических приспособлений, отбирающих фракции по всему поперечному сечению вещества в контейнере или протекающем потоке. Выбор методики пробоотбора зависит от однородности вещества, требуемой точности измерений, массы и объема анализируемого материала. Материалы, находящиеся в обращении в атомной промышленности, часто не настолько однородны, чтобы можно было использовать метод произвольного выбора.

Методы пробоотбора зависят от ряда параметров, не связанных с самими методами, такими как: физические и химические свойства материала; степень и тип неоднородности материала; способа перемешивания и других методов предварительной подготовки; размеров, формы и других свойств контейнеров, содержащих материал.

Необходимость пробоотбора объясняется тем, что в промышленных производствах ядерных материалов используются большие массы различных веществ, нередко достигающих десятков и сотен тонн. На анализ направляется сравнительно небольшое количество этих материалов порядка 1–2 кг. Непосредственно анализу подвергается гораздо меньшее количество, как правило, единицы граммов или даже миллиграммов. Поэтому возникает необходимость отбора из огромной массы исследуемого объекта небольшого количества, то есть средней пробы. Понятие пробы подразумевает представительную часть исследуемого объекта. Представительная проба должна отражать общий состав анализируемого объекта с учетом особенностей распределения всех компонентов. На практике этому условию удовлетворяют только однородные смеси. Во всех остальных случаях пробы лишь приближенно могут являться представительными. Таким образом, представительность пробы является её главной характеристикой. Кроме того, проба должна сохранять те свойства объекта, которые он имел в момент отбора, или изменять эти свойства идентично объекту.

Методы отбора проб весьма разнообразны и зависят от агрегатного состояния материала, характера материала (сыпучий или кусковой), степени его однородности. Существенно различаются операции пробоотбора для расплавленного и застывшего металла, для движущихся и неподвижных веществ, и так далее. Регламент методики пробоотбора определяется необходимым уровнем достоверности анализа. Отбор проб должен производиться в соответствии с нормативными документами.

Отбор проб при анализе материала, представленного большими количествами (руда, концентрат, полуфабрикат, окончательный продукт и другое), начинают с составления генеральной (первичной, начальной, общей, суммарной, объединенной, исходной) пробы. Генеральную пробу, характеризующую данную партию материала, получают объединением необходимого числа точечных (разовых, частных, единичных) проб. Точечная проба – это часть партии материала, которую отбирают за один приём из разных точек партии в определённый



момент времени. Поскольку масса отобранной генеральной пробы почти всегда значительна (составляет 2–3 % общего количества материала), её подвергают разделке (дроблению, перемешиванию, сокращению) по определённым правилам. При использовании одного или нескольких циклов разделки получают промежуточные средние пробы, которые разделяют так же как и генеральную пробу. В результате масса пробы последовательно уменьшается до тех пор, пока не будет получена готовая (средняя, сокращенная, товарная) проба.

Путем сокращения готовой пробы получают лабораторную (паспортную, сертификационную) пробу, предназначенную для проведения всех видов лабораторных испытаний, и контрольную (арбитражную, архивную, дубликатную, резервную) пробу, которую хранят на случай проведения повторных, арбитражных или других контрольных испытаний. Из лабораторной пробы готовят аналитическую пробу, которая уже непосредственно подвергается анализу.

Процесс последовательной разделки проб можно представить в виде схемы, показанной на рис. 4.7.1.



Рис. 4.7.1. Схема разделки проб и подготовки аналитической пробы

### Пробоподготовка

Этап пробоподготовки обычно делится на две стадии. Задачей первой стадии является получение пробы определенной массы и гранулометрического состава. Основные операции этой стадии – измельчение пробы, её перемешивание (гомогенизация) и сокращение. Задачей второй заключительной стадии является перевод пробы в такое состояние, которое требуется для анализа, с помощью определенного аналитического прибора. Основные операции этой стадии – вскрытие проб, разделение и концентрирование компонентов.

Этап пробоподготовки является одной из наиболее трудных, длительных и ответственных стадий всего анализа в целом. Часто трудности пробоподготовки лимитируют эффективность использования инструментальных методов анализа. Технологические приемы пробоподготовки постоянно совершенствуются и развиваются. При этом используются новые технические решения и способы повышения интенсификации процессов пробоподготовки. Основными приёмами интенсификации процессов вскрытия проб являются использование высокоагрессивных агентов и сред, работа при повышенных температурах и давлениях, воздействие электромагнитных полей, полей ионизирующего излучения.

Вскрытие проб основано на разрушении структуры анализируемого материала в результате реакций взаимодействия входящих в него компонентов с введенными реагентами. Результаты взаимодействия зависят от состава, строения кристаллической решетки, плотности упаковок атомов и других свойств. Часто вскрытие производится при повышенных температурах и давлениях. В большинстве случаев вскрытие пробы сводится к переводу её в раствор. Получение раствора анализируемого материала позволяет выполнить количественное определение элементов различными химическими, физико-химическими и физическими методами анализа. Перевод определяемого элемента в раствор позволяет значительно проще решить проблему градуировки для сложных по химическому составу проб. Спектр методов перевода проб в раствор достаточно широк. Правильно выбранные условия разложения проб позволяют не только перевести определяемый компонент в раствор, но и

отделить его от мешающих элементов. Методики вскрытия должны учитывать возможные потери элементов в результате образования летучих соединений или соединений, выпадающих в осадок.

Представление всех известных способов разложения проб, часто специфических для конкретного элемента, в рамках данного курса невозможно. Поэтому содержание курса ограничивается общими принципами выбора методов и реагентов для разложения объектов. Целью разложения пробы материала для последующего анализа является переводение её в состояние, обеспечивающее количественное определение соответствующих компонентов. Получить анализируемую пробу твердого вещества можно, разложив пробу «мокрым» (разложение растворами кислот, солей и щелочей) или «сухим» (разложение при помощи сплавления или спекания с различными плавнями) способами. Кроме того, используются специальные методы разложения. К ним относится термическое разложение, пирогидролит и пиролиз, разложение с использованием ионитов, минерализация проб и другие. Основным требованием является полнота вскрытия анализируемого образца. Растворение материалов в агрессивных жидкостях является наиболее быстрым способом разложения, приводящим к получению более чистых и удобных для анализа проб.

Реагентами для «мокрого» способа разложения анализируемых проб могут быть растворы минеральных и органических кислот, а также их смеси. Реже используют растворы солей и оснований. Выбор растворителя определяется его физическими и химическими свойствами, свойствами анализируемого материала и требованиями методов и устройств анализа. В тех случаях, когда растворение не обеспечивает полного вскрытия, используют «сухие» способы разложения.

#### ***Методы разделения и концентрирования элементов***

В технологии каждого элемента важной задачей является аналитическое определение, как содержания основного вещества, так и примесей. Практически во всех случаях возникает проблема предварительного отделения мешающих примесей от определяемого элемента или его концентрирования, если он находится в ультрамалых количествах. Часто эти задачи являются взаимосвязанными.

К разделению смесей обычно прибегают в тех случаях, когда методы прямого определения или обнаружения не позволяют получить правильный результат из-за мешающего влияния других компонентов образца. Особенно важно так называемое относительное концентрирование – отделение малых количеств определяемых компонентов от значительно больших количеств основных компонентов пробы.

Разрешение указанных проблем играет важную роль в технологии ядерных материалов, но особенно актуальны вопросы разделения и концентрирования при определении плутония, как в качестве основного компонента, так и в качестве примеси. Получение  $^{239}\text{Pu}$  в реакторах связано с образованием других изотопов этого и трансурановых элементов, а также разнообразных продуктов деления. Это обстоятельство оказывает влияние на качество плутония и выдвигает сложные проблемы технологического выделения плутония и анализа препаратов различного изотопного состава. Кроме этого, особенностью препаратов плутония является необходимость их очистки после длительного срока хранения от образующихся актиноидов.

Применение классических химических методов не позволяет решить указанные задачи, вследствие недостаточной избирательности, вызванной близостью физико-химических свойств разделяемых веществ, а также необходимости многократного «бесконечного» разбавления. Поэтому, именно в связи с необходимостью получения материалов ядерной чистоты, были разработаны методы выделения и разделения, позволяющие получить особо чистые вещества. Эти методы основаны на законах, которые стали известны, благодаря появлению радиохимии. Радиохимия – область химии, изучающая химию радиоактивных изотопов, элементов и веществ, их физико-химические свойства, химию ядерных превращений и сопутствующих им физико-химических процессов.

Наибольшее распространение в радиохимии получили методы, основанные на распределениях в системах жидкость – твердое, жидкость – жидкость, газ – твердое. К ним

относятся: I – методы соосаждения (1 – сокристаллизации и 2 – адсорбционного соосаждения), II – методы ионного обмена; III – методы экстракции; IV – электрохимические методы.

#### *Соосаждение*

Радиоактивные элементы зачастую находятся в столь малых концентрациях (менее  $10^{-10}$  моль/л), что не могут осаждаться с образованием собственной твердой фазы, так как не достигается величина произведения растворимости (ПР) даже для самых труднорастворимых соединений. Если радиоактивные элементы находятся в растворе в ультрамалых концентрациях, и при этом добавление веществ, способных давать труднорастворимые соединения, не приводит к образованию самостоятельной твердой фазы, то выделяют его из раствора соосаждением с носителем, концентрация которого в растворе достаточна для образования твердой фазы. Таким образом, соосаждение – это процесс, в котором микрокомпонент увлекается из раствора осаждающимся макро-компонентом-носителем. Этот процесс практически всегда имеет место при осаждении макрокомпонентов системы, то есть всегда происходит захват примесей осадком.

Чаще всего в качестве носителя применяют элемент, химические свойства которого аналогичны, но не тождественны таковым для изучаемого микрокомпонента. Основной целью применения носителей-аналогов (то есть специфических неизотопных носителей), является установление химической формы и выделение исследуемого микро-компонента (часто с последующим отделением от носителя). Применяются также соединения элементов, свойства которых значительно отличаются от свойств соответствующих соединений изучаемого микрокомпонента (то есть не специфические неизотопные носители). В первом случае соосаждение является результатом объемного распределения микрокомпонента между осадком и раствором, то есть происходит сокристаллизация. Во втором случае происходит поверхностно-объемное распределение, так называемое адсорбционное соосаждение.

Сокристаллизация – это процесс соосаждения микрокомпонента с кристаллическими осадками, при котором микрокомпонент распределяется по всему объему твердой фазы, участвуя в построении кристаллической решетки макро-компонента. При этом образуются смешанные кристаллы (твердые растворы) – но это не механическая смесь ионов, атомов, молекул, а все они являются равноправными участниками в построении кристаллических решеток. Сокристаллизация имеет большое значение для отделения и концентрирования радиоактивных элементов, которые, как правило, присутствуют в качестве микрокомпонентов. Методом соосаждения были впервые выделены Ra и Po, продукты деления урана – «осколки» и Pu. Например, исторически первыми способами выделения плутония были соосадительные: лантан-сульфатный, лантан-фторидный, висмут-фосфатный и другие. Лантан-сульфатный способ основан на сокристаллизации, то есть образовании смешанных кристаллов макрокомпонента-носителя – двойного сульфата лантана  $KLa(SO_4)_2 \cdot H_2O$  – и соосаждаемого микрокомпонента плутония в форме его двойного сульфата  $K_4Pu(SO_4)_4 \cdot H_2O$ .

Адсорбционное соосаждение заключается в переносе вещества (ионов, молекул, коллоидных частиц) из раствора на поверхность твердой фазы, называемой адсорбентом или неспецифическим неизотопным носителем, в то время как при сокристаллизации микро- и макрокомпоненты должны находиться в ионной форме. Если при сокристаллизации микрокомпонент распределяется между раствором и объемом осадка-носителя, участвуя в построении кристаллической решетки, то при адсорбционном соосаждении имеет место поверхностно-объемное распределение за счет первичной, вторичной и внутренней адсорбции. Адсорбция играет в радиохимии исключительно важную роль, вызывая значительное перераспределение радиоактивных изотопов (находящихся часто при предельных разбавлениях  $\leq 10^{-10}$  М) между раствором и твердой фазой или конструкционными материалами (стекло, металлы и так далее). В то же время адсорбционные методы очень широко используются для выделения радиоактивных изотопов и других микрокомпонентов из растворов. Основную роль в радиохимии играет адсорбция ионов радиоактивных изотопов на мелкокристаллических осадках и осадках с сильно развитой поверхностью, типа гидроксидов, силикагелей, алюмокремниевых гелей и так далее, на природных и синтетических ионообменных веществах.

Все адсорбенты можно разделить на две группы. К первой относятся адсорбенты, которые образуются непосредственно в процессе адсорбции, например, гидроксиды металлов, коллоиды, алюмо- и силикагели, суспензии, полярные кристаллы, то есть те, которые

адсорбируют радиоактивные изотопы непосредственно во время осаждения (захват осадком посторонних ионов имеет место практически всегда при осаждении). Ко второй группе относятся адсорбенты, которые приготовлены заранее. Это активированные угли, те же алюмо- и силикагели, стекло, бумага, природные (минеральные и органические) и синтетические иониты. Первая группа адсорбентов обычно используется для отделения радиоактивных изотопов от сопутствующих примесей путем однократного проведения процесса методом соосаждения. Вторая группа адсорбентов используется не только для выделения, но и для разделения микро- и макрокомпонентов (чаще).

Применение адсорбентов второй группы (то есть приготовленных заранее), позволяет проводить процесс адсорбции двумя способами: 1) в статических и 2) в динамических условиях. Адсорбция в статических условиях заключается в длительном контакте адсорбента с раствором при постоянном перемешивании до достижения равновесия. После этого фазы разделяются, и адсорбированный элемент удаляется (десорбируется) с адсорбента. Адсорбция в динамических условиях заключается во взаимодействии движущегося раствора, содержащего радиоактивный изотоп, с неподвижным адсорбентом, то есть адсорбция в динамических условиях является неравновесным процессом, в отличие от адсорбции в статических условиях. Процесс неравновесного распределения компонента между твердой и жидкой фазами, основанный на явлении адсорбции, называется хроматографией.

В современном представлении хроматографические методы основаны не только на адсорбционных явлениях. В зависимости от механизма взаимодействия в настоящее время различают четыре типа хроматографического разделения.

Адсорбционная хроматография – использует адсорбцию молекул и ионов. В основе этого метода лежит неодинаковая адсорбционная способность веществ по отношению к твердому адсорбенту. Ионообменная хроматография – основана на разделении ионов с помощью природных и синтетических ионообменников (ионитов). Эти иониты могут рассматриваться не только как физические адсорбенты, но и как химические реагенты. Осадительная (иногда называют осадочная) хроматография – в ней используются вещества, осаждающие распределяющийся компонент в виде малорастворимого соединения. Осадитель либо сам заполняет колонку, либо им пропитывают инертный носитель. Осадки располагаются в колонке в соответствии с растворимостью образующихся соединений, начиная с наименьших значений. Распределительная хроматография – метод, отличие которого от первых трех (в которых твердая фаза принимает непосредственное участие в распределительных взаимодействиях) заключается в том, что твердая фаза является инертным носителем жидкой фазы, не смешивающейся с раствором. Разделение в этом случае осуществляется за счет распределения радиоактивного изотопа между двумя жидкими фазами (раствором и жидкостью, содержащейся в твердой фазе). Разделяемая смесь берется в виде раствора, растворитель которого не смешивается с неподвижной жидкой фазой. Вследствие этого, разделение веществ в этом случае подчиняется закономерностям экстракционных процессов.

В зависимости от способа реализации, хроматография может осуществляться на колонках, на бумаге, в тонком слое адсорбента. Следует отметить, что эти методы используются как для аналитических целей (колонки диаметром в доли миллиметра), так и промышленных (аппараты диаметром несколько метров и высотой в несколько десятков метров), например, в технологии золота, урана и многих других редких элементов. Хроматография чаще применяется для разделения смеси компонентов, наряду с выделением их из бесконечно разбавленных растворов. Из всех хроматографических методов наибольшее значение в радиохимической практике имеет ионный обмен.

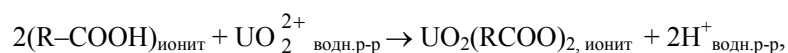
Ионообменные процессы занимают важное место в аналитической практике и в технологиях практически всех редких, рассеянных и радиоактивных элементов, а особенно – в атомной промышленности. Наряду с применением для извлечения урана из растворов (пульп), получаемых при выщелачивании урановых концентратов и подземного выщелачивания руд, эти процессы используются для полного обессоливания воды на АЭС, для улавливания радиоактивных изотопов из сточных вод атомных предприятий, при переработке облученного ядерного топлива.

Ионный обмен – это процесс стехиометрического обмена ионов одного знака между ионитом и раствором. Поскольку ионообменные смолы являются твердыми веществами, то

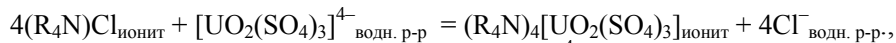
процессы разделения с их помощью относятся к группе методов, основанных на явлении распределения вещества между твердой и жидкой фазами.

Ионитами (ионообменными смолами) называют органические или неорганические вещества, практически нерастворимые в воде и других растворителях, содержащие активные (ионогенные) группы с подвижными ионами, и способными обменивать эти ионы в эквивалентном количестве на ионы других электролитов (поглощаемые ионы). Ионообменные смолы представляют собой твердые нерастворимые полиэлектролиты (кислоты, основания, соли) и являются высокомолекулярными соединениями, имеющими трехмерную пространственную структуру макромолекул. Этим и объясняется их низкая растворимость. Каждый ионит состоит из каркаса (матрицы), связанного валентными силами или силами кристаллической решетки. В матрице закреплены фиксированные ионы, которые создают на ней положительный или отрицательный заряд, компенсирующийся зарядом подвижных ионов противоположного знака (противоионов). Противоионы свободно перемещаются в порах ионита и могут быть заменены другими противоионами. Катионит представляет собой полианион с подвижными катионами, а анионит – поликатион с подвижными анионами. Биполярные иониты (амфолиты) имеют катионо- и анионообменные группы. Из всех типов ионитов наибольшее применение нашли синтетические ионообменные смолы. Их преимущества: большая химическая и механическая стойкость, высокая обменная емкость, высокая рабочая скорость процесса, возможность варьирования свойств смол. За исключением сильных окислителей и восстановителей они устойчивы практически ко всем растворителям. В зависимости от характера введенных ионообменных (ионогенных) групп, все иониты делятся на: катиониты – сорбенты, содержащие в своей структуре кислотные группы, то есть сорбенты, обладающие свойствами кислот и способные к обмену катионов; аниониты – сорбенты, содержащие в своей структуре основные группы, то есть сорбенты, обладающие свойствами оснований и способные к обмену анионов; амфолиты (амфотерные иониты) – в зависимости от pH раствора диссоциируют как кислотные или основные иониты.

В водных растворах уран, плутоний и торий в зависимости от условий могут существовать в виде простых ионов, нейтральных молекул, катионных и анионных комплексов. Форма состояния вещества оказывает решающее влияние на характер его распределения между двумя фазами, например, катионы не могут сорбироваться на анионитах, анионы – на катионитах; молекулы и коллоиды могут претерпевать лишь адсорбционное соосаждение. Например, извлечение из водного раствора урана в катионной форме на катионите СГ-1 описывается уравнением:



здесь R – высокомолекулярная матрица, (–COO<sup>–</sup>) – фиксированный ион, (R–COO<sup>–</sup>) – полианион, а UO<sub>2</sub><sup>2+</sup> и H<sup>+</sup> – обменивающиеся ионы. Сорбция урана в форме анионного комплекса [UO<sub>2</sub>(SO<sub>4</sub>)<sub>3</sub>]<sup>4–</sup> на анионите (четвертичном аммониевом основании) описывается уравнением:



то есть здесь происходит обмен анионами [UO<sub>2</sub>(SO<sub>4</sub>)<sub>3</sub>]<sup>4–</sup> и Cl<sup>–</sup>.

Возможность изменения степени окисления урана и плутония при сорбции и десорбции в сочетании с высокой комплексообразующей способностью U, Pu и Th позволяют проводить их концентрирование в сотни раз и освободиться от примесей.

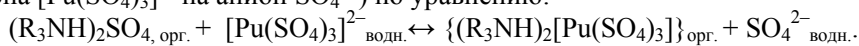
#### *Экстракция*

Основой экстракционного разделения является распределение веществ в гетерогенной системе жидкость-жидкость. В этом случае обе фазы представляют собой растворы разделяемых веществ. Осуществляется экстракция при контакте фаз в условиях интенсивного массообмена раствора и экстрагента с последующим отстаиванием и разделением фаз и регенерацией экстрагента (или его удалением). Два растворителя (как правило – водный раствор и органический растворитель) не должны смешиваться друг с другом или должны иметь минимальную взаимную растворимость, отличаться друг от друга по плотности, иметь низкую вязкость. Экстрагент должен легко регенерироваться и обладать селективностью растворения по отношению к извлекаемому веществу. Регенерация может осуществляться





комплексы, то очевидным является значение этого класса экстрагентов для их выделения и разделения. Например, экстракция комплексного сульфатного аниона плутония  $[\text{Pu}(\text{SO}_4)_3]^{2-}$  третичным амином  $\text{R}_3\text{N}$  в солевой форме  $(\text{R}_3\text{NH})_2\text{SO}_4$  протекает по механизму ионного обмена (аниона  $[\text{Pu}(\text{SO}_4)_3]^{2-}$  на анион  $\text{SO}_4^{2-}$ ) по уравнению:



Экстрагенты второй и третьей групп называют жидкими ионообменниками.

#### *Электрохимические методы*

Электрохимические методы выделения и разделения радиоактивных элементов (изотопов) получили широкое распространение в радиохимической практике для выделения радиоактивных изотопов из растворов и расплавов. Одним из преимуществ электрохимических методов является возможность получения тонких равномерных слоев радиоактивных веществ высокой степени чистоты, что особенно важно для количественного радиометрического анализа. Разделение с помощью электролиза основано на способности ионов восстанавливаться при определенных потенциалах, в соответствии с положением в ряду напряжений. Если эти потенциалы заметно различаются, то можно последовательно выделить разделяемые ионы на катоде в виде металлов или на аноде в виде оксидов (гидроксидов).

Для разделения или выделения элементов может применяться метод электрохимического осаждения более благородного металла на менее благородном (то есть с меньшим значением электродного потенциала в ряду напряжений), при погружении последнего в раствор, содержащий ионы выделяемых металлов. Это явление носит название цементации (бестокового осаждения, то есть вытеснения металлов из растворов); для его протекания необходима достаточная разность электродных потенциалов соответствующих пар ионных и элементных форм распределяющегося вещества. Цементацию широко используют для очистки раствора, содержащего основной металл, от примесей и для выделения основного металла из раствора.

Электролитические методы применяются для количественного выделения индикаторных количеств урана, нептуния, плутония и других актиноидов из растворов, а также для подготовки проб к радиометрическому определению. Эти методы применяются также для изучения свойств радиоактивных изотопов, для получения U, Pu и других элементов в определенном валентном состоянии.

#### *Применение радиохимических методов*

Большинство методов отделения урана от мешающих элементов основано на выделении самого урана из анализируемого раствора, меньшая часть – на выделении примесей. Наиболее широкое применение для отделения урана нашли методы осаждения, экстракции и хроматографические методы, иногда применяются и дистилляция, возгонка, электролиз, электродиализ, и так далее. Для отделения малых количеств урана более подходящими являются соосаждение с носителем и экстракция, а также хроматография. Из методов отделения урана осаждением наибольшее распространение получили карбонатный метод, состоящий в осаждении большинства мешающих элементов при помощи карбоната аммония или карбонатов щелочных металлов, взаимодействующих с ураном (VI) с образованием растворимого карбонатного комплекса, а также осаждение урана фосфатами, перекисью водорода, купфером, фторидами и  $\delta$ -оксихинолином. Экстракция в настоящее время является одним из лучших и наиболее часто применяемых методов отделения урана. Широкое применение экстракции для отделения элементов обусловлено тем, что этот метод отличается от других малой продолжительностью, применим для выделения элементов в самом широком диапазоне их концентраций и пригоден для выделения анализируемого элемента в таких малых концентрациях, которые значительно ниже растворимости обычных осадков. Для отделения урана основное значение получила экстракция урана (VI). Экстракционное отделение урана можно вести в виде молекулярных соединений уранилнитрата с экстрагентами (экстрагирование диэтиловым эфиром, трибутилфосфатом и другое), в виде внутрикислотных солей (экстракционное отделение с применением теноилтрифторацетона), а также в виде солей комплексных анионов урана с органическими катионами, в виде солей алкилфосфорных кислот и другое. Из хроматографических методов наибольшее значение имеет ионный обмен.

При выделении и очистке плутония широко используются различия в химическом поведении его отдельных окислительных состояний, а также то, что плутоний легче, чем уран и

нептуний, восстанавливается до 4-валентного и труднее окисляется до 6-валентного состояния. Поэтому обычно при выделении плутония проводят ряд окислительно-восстановительных циклов, в ходе которых плутоний соосаждается с каким-либо носителем, после чего осаждение повторяется, но плутоний, переведенный в другое окислительное состояние, уже не захватывается осадком. Извлечение плутония из растворов облученного урана и очистка его представляют сложную задачу, которая обычно решается на основе осадительных, экстракционных или ионообменных методов. В основе очистки осадительными методами лежит способность плутония проявлять различные свойства в зависимости от степени окисления, которую можно легко изменять. Осадительные методы очистки плутония имеют много вариантов. К ним относятся такие методы, как лантансульфатный, висмутфосфатный, лантанфторидный, натрийуриилацетатный, а также соосаждение с сульфатом калия, с фосфатом циркония, с оксалатом лантана и др. Плутоний в экстракционных процессах ведет себя по-разному в различных валентных состояниях и, переводя его из одного валентного состояния в другое, можно добиться отделения от многих элементов. В большинстве случаев экстрагируемость плутония увеличивается в ряду  $\text{Pu(V)} < \text{Pu(III)} < \text{Pu(VI)} < \text{Pu(IV)}$ , аналогично ряду устойчивости их комплексных соединений. В качестве экстрагентов используют ТБФ, эфиры и кетоны, фосфорорганические кислоты, амины. Применяют также сильные комплексообразователи типа теноилтрифторацетона, ацетилацетона и другие. В случае четырехвалентных элементов экстракция улучшается в ряду:  $\text{Th} < \text{Np(IV)} < \text{Pu(IV)}$ . В шестивалентном состоянии экстрагируемость увеличивается в обратном порядке:  $\text{Pu(VI)} < \text{Np(VI)} < \text{U(VI)}$ . Трехвалентные актиноиды экстрагируются трибутилфосфатом плохо. При промышленном производстве плутония сначала  $\text{Pu(IV)}$  и  $\text{U(VI)}$  экстрагируют трибутилфосфатом, после чего органическая фаза приводится в контакт с раствором, содержащим восстановитель (гидразин). Образующийся при этом  $\text{Pu(III)}$  переходит в водную фазу, уран же остается в ТБФ. Окончательная очистка и концентрирование плутония достигаются с помощью ионообменной хроматографии. Из хроматографических методов наибольшее значение имеет ионный обмен и распределительная хроматография.

Отделение тория от большинства элементов, кроме Y, Sc и лантаноидов, производится в виде оксалата. Широко распространено осаждение тория иодатом калия: при этом соосаждаются Sc, Ti и Zr, а также 4-валентные Ce и U. При предварительном введении перекиси водорода Ce восстанавливается до 3-валентного, а U окисляется до 6-валентного, что предотвращает их осаждение. Для отделения тория применяется также ряд органических реагентов. Для отделения тория от редких земель и урана используются также методы экстракции трибутилфосфатом из азотнокислых растворов и ионного обмена.

#### ***Методы определения урана, плутония и тория***

В зависимости от цели анализа различают качественный анализ и количественный анализ. Задача первого – обнаружение и идентификация компонентов анализируемого образца, второго – определение их концентраций или масс. В зависимости от решаемых задач различают элементный анализ, когда устанавливается состав пробы по элементам; изотопный, когда устанавливается состав пробы по изотопам; молекулярный, когда устанавливается молекулярный состав пробы; структурный, когда устанавливаются все, или основные структурные составляющие молекулярного соединения.

#### ***Качественное определение U, Pu, Th***

Для обнаружения урана, плутония и тория большое значение имеет радиометрические методы, рассмотренные в разделе 4.4 данного курса.

*Уран.* Для урана характерными качественными реакциями являются люминесцентные и цветные с неорганическими и органическими реагентами.

Люминесцентный метод основан на способности ионов уранила  $\text{UO}_2^{2+}$  давать яркую желто-зеленую флюоресценцию под действием ультрафиолетового излучения (см. рис. 4.7.2, 4.7.3).

Это самый чувствительный метод, его чувствительность при определении урана составляет  $10^{-10}$  г. Обычно для количественного анализа этот метод используют при анализе проб, содержащих не более 0,001 % масс. урана. Наибольшей интенсивностью свечения обладают фосфорнокислые растворы уранила, затем – растворы, содержащие сульфат- или



фторид-ионы. Присутствие посторонних ионов обычно снижает интенсивность свечения. Практически определение проводят непосредственно в растворах или твердых солях, либо в проплавленных на платиновой проволоке корольках из фтористого натрия, погруженных в исследуемый раствор и вновь проплавленных. Появление в ультрафиолетовых лучах желто-зеленого свечения указывает на присутствие урана.

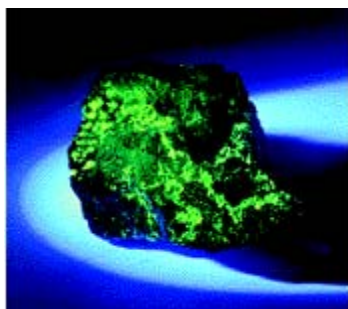
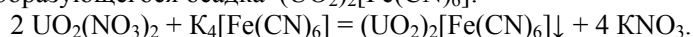


Рис. 4.7.2. Свечение урановой руды под действием ультрафиолетового излучения.



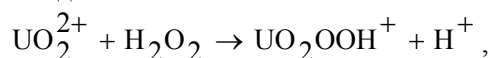
Рис. 4.7.3 Свечение в темноте под действием ультрафиолетового света кристаллофосфора (сплава урановой соли с фторидом натрия).

Для цветных реакций известно несколько десятков неорганических реагентов. Для обнаружения урана используют роданид калия  $\text{KCNS}$  или аммония  $\text{NH}_4\text{CNS}$ , дающие с ураном желтое окрашивание, вследствие образования водорастворимых комплексов типа  $[\text{UO}_2(\text{CNS})]^+$ ,  $[\text{UO}_2(\text{CNS})_2]$  и  $[\text{UO}_2(\text{CNS})_3]^-$ . Чувствительность метода невысока – от 20 до 40  $\text{мкг}\cdot\text{мл}^{-1}$ . Открытию не мешают  $\text{Zr}^{4+}$ ,  $\text{Th}^{4+}$ ,  $\text{Sn}$ ,  $\text{Mn}$ , ацетаты, сульфаты и фосфаты. Весьма чувствительным и доступным методом является открытие урана с ферроцианидом калия по красно-бурой окраске образующегося осадка  $(\text{UO}_2)_2[\text{Fe}(\text{CN})_6]$ :

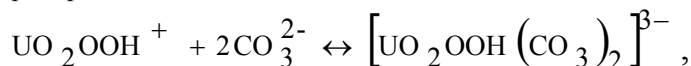


Определение выполняется в слабокислой среде при  $\text{pH} = (4 - 6)$  ванадий и железо не мешают, но многие элементы, а также ацетаты, оксалаты, цитраты, фосфаты и другие комплексообразующие вещества влияют достаточно сильно. Чувствительность метода – (10 – 20) микрограмм урана в 25 мл раствора.

Широкое распространение получил метод определения урана с пероксидом водорода  $\text{H}_2\text{O}_2$  в среде  $\text{Na}_2\text{CO}_3$ : к небольшому объему исследуемого раствора добавляют раствор карбоната натрия  $\text{Na}_2\text{CO}_3$  и несколько капель  $\text{H}_2\text{O}_2$ . При  $\text{pH} \geq 3$  образуется хорошо растворимый уранил-гидропероксид-ион:



который в щелочно-карбонатных средах образует прочное комплексное соединение – уранил-дикарбонат-гидропероксид-ион:



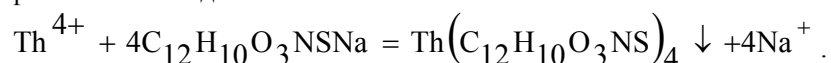
в присутствии ионов уранила развивается ярко-желтая окраска за счет образования пероксида урана. Чувствительность метода составляет (5 – 10)  $\text{мкг}\cdot\text{мл}^{-1}$ . Мешают определению хром, ванадий, молибден, вольфрам, меньше медь, никель, железо, марганец. Весьма чувствительным методом является открытие урана с ферроцианидом калия по красно-бурой окраске образующегося осадка  $(\text{UO}_2)_2[\text{Fe}(\text{CN})_6]$ . Чувствительность метода – (10 – 20) микрограмм урана в 25 мл раствора. Следует отметить, что и сами водные растворы растворимых солей уранила имеют характерную желтую или желто-зеленую окраску, растворы солей четырехвалентного урана имеют зеленый цвет. Окрашенные органические реагенты, как правило, более чувствительны. Они образуют с ураном сложные внутрикомплексные соединения. Применяют арсеназо-I, -II, -III, торон, алюминон, ализарин-S и другие реагенты. Торон (2-фениларсеназовая кислота – < I-азо-I>-2 оксинафталин-3,6-дисульфоновая кислота) предложен для определения четырехвалентного урана. Предварительное восстановление урана проводится в свинцовом редуторе. Чувствительность метода ~ 0,5  $\text{мкг U}^{4+}\cdot\text{мл}^{-1}$ . Фосфаты,

сульфаты, оксалаты мешают определению и должны быть полностью удалены. Реагент ализарин-S предложен для определения шестивалентного урана, чувствительность метода – порядка 10 мкг U·мл<sup>-1</sup>. В ходе определения происходит изменение окраски раствора из розового (реагент) в красно-фиолетовую.

*Плутоний.* Качественное определение плутония в сложных по химическому составу объектах проводится довольно редко. Часто для этой цели используется цвет самих водных растворов ионов плутония; в разных состояниях они имеют следующие цвета: Pu<sup>3+</sup> – голубой, бледно-лиловый; Pu<sup>4+</sup> – жёлто-коричневый; PuO<sub>2</sub><sup>2+</sup> – розово-оранжевый; PuO<sub>2</sub><sup>+</sup> – первоначально розовый, но будучи нестабильным в растворе, этот ион диспропорционирует на Pu<sup>4+</sup> и PuO<sub>2</sub><sup>2+</sup>; Pu<sup>4+</sup> затем окисляется, переходя из PuO<sub>2</sub><sup>+</sup> в PuO<sub>2</sub><sup>2+</sup>, и восстанавливается до Pu<sup>3+</sup>. Таким образом, водный раствор плутония со временем представляет собой смесь Pu<sup>3+</sup> и PuO<sub>2</sub><sup>2+</sup>. Семивалентный плутоний Pu(VII) в форме иона PuO<sub>5</sub><sup>3-</sup> – тёмно-красный, он является редким и существует только в чрезвычайно окислительных условиях в щелочной среде. Но при этом цвет раствора с плутонием зависит как от его валентности, так и от природы аниона, причём существенное влияние оказывает способность плутония образовывать комплексы с кислотным анионом.

Плутоний в различных окислительных состояниях образует большое число труднорастворимых соединений и экстрагируемых комплексов как с неорганическими, так и с органическими реагентами. Так, например, трехвалентный плутоний осаждается избытком аммиака или щелочи в виде гидроксида голубого цвета, а четырехвалентный плутоний осаждается в виде гидроксида бурого цвета из нитратных, хлоридных, сульфатных и перхлоратных растворов. Кроме того, плутоний образует целый ряд труднорастворимых соединений – йодаты, фосфаты, оксалаты и многие другие, в том числе и соединения с органическими реагентами. Однако эти реакции, так же как цветные реакции, недостаточно специфичны, так как многие элементы – уран, нептуний, торий и цирконий – ведут себя аналогично плутонию.

*Торий.* Аналитическая химия тория в значительной степени осложнена близостью свойств тория с элементами, ассоциированными с ним в природе (главным образом это редкоземельные элементы – иттрий, скандий, лантан и 14 лантаноидов). Наличие практически одной степени окисления у тория, а также бесцветность его иона ограничивают число реакций, пригодных для распознавания и определения. Для качественного определения тория предложен ряд реакций, основанных на образовании окрашенных соединений тория с органическими реагентами, как, например, алюминоном, хинализарином, галловой кислотой, арсеназо и другими. К их числу относится и натриевая соль дифениламин-4-сульфоуксусная кислота, с которой образуется красно-фиолетовый осадок:

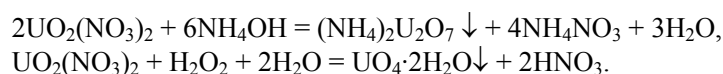


Однако эти реагенты образуют аналогичные окрашенные соединения с элементами редкоземельной группы, цирконием и частично с титаном. Качественно и полуколичественно торий можно определять методами оптического спектрального и рентгеноспектрального анализа. Чувствительность рентгеноспектрального определения тория достигает 0,1%. Радиохимическое определение тория в случае равновесия с его продуктами распада возможно по накоплению торона. Используется также радиометрический метод определения тория по  $\alpha$ -излучению продуктов распада.

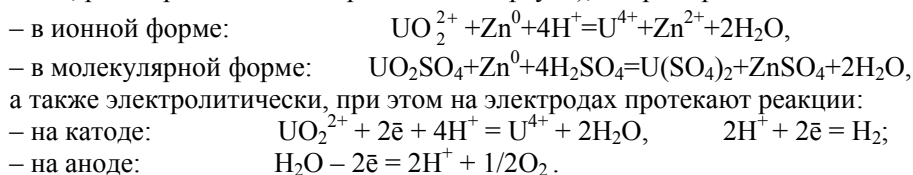
#### *Химические методы определения U, Pu, Th*

К химическим методам определения относятся гравиметрические (весовые) и титриметрические (объемные). Первые чаще заключаются в осаждении труднорастворимых соединений, последующем их прокаливании с целью достижения определенной весовой формы, взвешивании и пересчете на элемент. Весовые методы обладают высокой точностью – до 0,1%. Недостатками являются большая продолжительность и невысокая чувствительность. Объемные методы основаны на измерении объема реагента-титранта с точно известной концентрацией, пошедшего на титрование определяемого иона в растворе до точки эквивалентности, и последующего расчета количества определяемого элемента по аналитической реакции.

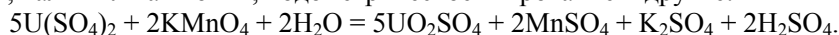
*Определение урана.* Весовые методы основаны на осаждении урана из растворов, например, по классическим реакциям:



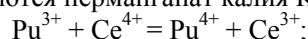
Осадки прокаливают на воздухе при 900°C до образования закиси-оксида урана  $\text{U}_3\text{O}_8$ , которую взвешивают после охлаждения. Титриметрические (объемные) методы по точности не уступают весовым. Наибольшее распространение получили методы окислительного титрования  $\text{U(IV)} \rightarrow \text{U(VI)}$ , то есть  $\text{U}^{4+} \rightarrow \text{UO}_2^{2+}$ , после обязательного предварительного восстановления  $\text{UO}_2^{2+}$  до  $\text{U}^{4+}$  металлическими цинком или висмутом, свинцом, кадмием, или же их амальгамами (металлами, растворенными непосредственно в ртути), например:



После восстановления проводят титрование растворами окислителей, в качестве которых используют  $\text{KMnO}_4$  (перманганат калия),  $\text{K}_2\text{Cr}_2\text{O}_7$  (бихромат калия),  $\text{Ce}(\text{SO}_4)_2$  (сульфат церия), ванадаты натрия, калия или аммония, йодометрическое титрование и другие:

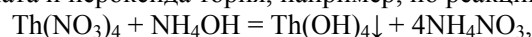


*Определение плутония.* Химические методы определения плутония применяются относительно редко. В настоящее время методы весового анализа применяют для определения миллиграммовых или граммовых количеств плутония в случаях, когда требуется высокая точность (0,1–0,2 отн. %). Большинство весовых методов основано на осаждении плутония из растворов в виде соединений четырехвалентного плутония. В этом валентном состоянии плутоний образует большое количество труднорастворимых соединений. Методы осаждения трех- или шестивалентного плутония используются для определения содержания одной валентной формы плутония в присутствии другой. Весовые методы определения плутония заключается в осаждении иона плутония в виде труднорастворимого соединения и переводение его в весовую форму, чаще всего это  $\text{PuO}_2$ . Другой весовой формой является дигидрат тетрасульфатоплутонат (IV) тетракалия  $\text{K}_4\text{Pu}(\text{SO}_4)_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ , так как это соединение отвечает стехиометрии; реже используют иодат  $\text{Pu}(\text{IO}_3)_4$ . Титриметрические (объемные) методы определения используются редко, основаны главным образом на окислительно-восстановительных реакциях вследствие поливалентности плутония. Из всех возможных окислительно-восстановительных превращений плутония ( $\text{Pu}^{3+} \leftrightarrow \text{Pu}^{4+}$ ;  $\text{Pu}^{3+} \leftrightarrow \text{PuO}_2^{2+}$ ;  $\text{Pu}^{4+} \leftrightarrow \text{PuO}_2^{2+}$ ) наиболее приемлемым является окисление  $\text{Pu}^{3+}$  до  $\text{Pu}^{4+}$ ; в качестве титранта-окислителя успешно применяются перманганат калия  $\text{KMnO}_4$ , дихромат калия  $\text{K}_2\text{Cr}_2\text{O}_7$ ,  $\text{Ce}(\text{SO}_4)_2$ :



индикатором служит ферроин (комплекс железа с о-фенантролином).

*Определение тория.* Весовые методы определения тория в основном имеют конечную весовую форму тория в виде его диоксида и используются при необходимости проведения анализа с высокой точностью. Определение тория в виде диоксида сводится к осаждению гидроксида, оксалата и пероксида тория, например, по реакции:



с последующей прокалкой осадков до  $\text{ThO}_2$ . Объемные методы определения тория весьма ограничены. Все они, как правило, длительны и включают в себя операции предварительного выделения тория в виде нерастворимого соединения постоянного состава. Торий определяют косвенным путем, по содержанию аниона выделенной в осадок соли тория.

*Инструментальные методы определения U, Pu, Th*

Классификация инструментальных методов (табл. 4.7.1) приведена в начале раздела. Из указанных методов при работе с ядерными материалами, в первую очередь с делящимися, наиболее часто используются следующие:

- из молекулярно-спектроскопических методов: спектрофотометрические методы, люминесцентные методы;
- из атомно-спектроскопических методов: атомно-эмиссионный спектральный анализ и рентгеноспектральный флуоресцентный анализ;

- из электрохимических методов: потенциометрия, кулонометрия, в меньшей степени – полярография и вольтамперометрия.

*Спектрофотометрические методы* относятся к молекулярной абсорбционной спектроскопии и основаны на поглощении монохроматического света. Спектрофотометрия – это физико-химический метод исследования растворов и твёрдых веществ, основанный на поглощении излучения в ультрафиолетовой (200—400 нм), видимой (400—760 нм) и инфракрасной (>760 нм) областях спектра. Природа полос поглощения в ультрафиолетовой (185 – 400 нм) и видимой (400 – 760 нм) областях спектра одинакова и связана, главным образом, с числом и расположением электронов в поглощающих молекулах и ионах. В инфракрасной области (0,8 – 1000 мкм) она в большей степени связана с колебаниями атомов в молекулах поглощающего вещества. В соответствии с основным законом светопоглощения количество электромагнитного излучения, поглощённого раствором, пропорционально концентрации поглощающих частиц и толщине слоя раствора:  $D = \varepsilon \cdot c \cdot l$  (здесь  $D$  – оптическая плотность,  $\varepsilon$  – молярный коэффициент светопоглощения,  $l$  – толщина поглощающего слоя, то есть длина оптического пути).

Все известные фотометрические методы определения элементов можно разделить на следующие группы. Первая группа – методы, основанные на растворах солей актиноидных элементов. Ионы ряда актиноидных элементов имеют ряд характерных полос поглощения, специфичных для только определенного валентного состояния. Вторая группа – методы, основанные на образовании комплексных соединений элементов с простейшими неорганическими комплексообразователями (пероксид водорода, ферроцианид калия и другие). Третья группа – методы, основанные на образовании внутрикомплексных соединений с интенсивно окрашенными реагентами. Четвертая группа – методы, основанные на цветных твердофазных реакциях с некоторыми органическими красителями с образованием суспензий соединений, отличающихся по окраске от растворов самих красителей. Из них наиболее чувствительными являются методы 3-й и 4-й группы. На практике для количественных определений применяются главным образом методы 3-й группы: они позволяют определить микрограммы урана, тория и плутония в миллилитре раствора. Такие реагенты, как арсеназо III, обладают высокой избирательностью вследствие образования очень прочных внутрикомплексных соединений, особенно с многозарядными ионами, в сильноокислых средах. Последнее обстоятельство позволяет разрушить менее прочные комплексы малозарядных ионов и радикально увеличить избирательность определения U, Pu и Th, являющихся сильными комплексообразователями. Спектрофотометрия (1-я группа методов) позволяет определить степень окисления элемента или соотношение между его различными валентными формами ( $U^{4+}$  и  $UO_2^{2+}$ ), а для плутония этот метод является единственным, позволяющим определить все четыре валентные формы при их совместном присутствии, поскольку каждой степени окисления соответствуют неперекрывающиеся максимумы светопоглощения.

*Люминесценция* возникает в результате поглощения веществами первичной энергии и испускания почти всей или некоторой части этой энергии в виде светового излучения (см. раздел NS4.2.4).

Спектр люминесценции и его максимум всегда смещен по сравнению со спектром возбуждения в сторону более длинных волн (закон Стокса-Ломмеля), поэтому свет первичного источника возбуждения практически не мешает наблюдению (регистрации) вторичного излучения. Качественный анализ можно проводить по спектру флюоресценции, а количественный – по интенсивности. Таким образом, метод основан на реизлучении, то есть на вторичном излучении света веществом. Количественные определения элементов данным методом ведутся с начала 50-х годов XX века, однако наибольшее развитие люминесцентного анализа для определения актиноидов и РЗЭ (редкоземельных элементов – Y, Sc, La и 14 лантаноидов) приходится на начало 80-х годов и связано с применением импульсных источников возбуждающего излучения, в частности, азотных лазеров, позволивших в совокупности значительно увеличить чувствительность и селективность анализа.

Для соединений актиноидных элементов характерна флюоресценция, возбуждаемая ультрафиолетовым излучением; свечение наблюдается в видимой области (желто-зеленое), то есть спектр возбуждающего излучения не мешает определению, так как он не перекрывается со спектром флюоресценции (вторичного излучения). Наибольшее значение метод имеет для

шестивалентного урана благодаря высокой чувствительности (порядка  $10^{-10}$  г U); по отношению к урану он является уникальным по сравнению со всеми другими элементами. Применяют метод и для определения Np, Pu и Am по их люминесценции в растворах в кристаллофосфорах. Люминесцируют  $UO_3 \cdot nH_2O$ ,  $UF_6$ ,  $Na_2U_2O_7$ ; сильно люминесцируют соединения урана, в которых он находится в 6-валентном состоянии и особенно – в форме иона уранила, например,  $UO_2(NO_3)_2$ ,  $UO_2SO_4$  и других. Методы количественного люминесцентного анализа можно разделить на несколько групп: 1) люминесценция по свечению водных растворов определяемых соединений (растворы солей урана, люминесцентные реакции комплексообразования); 2) люминесценция кристаллофосфоров или твёрдых растворов (некоторые твёрдые вещества, активированные небольшими добавками люминесцирующих веществ, приобретают интенсивное свечение, например, уран в количестве  $10^{-5}$  мкг можно определить с применением кристаллофосфора на основе NaF); 3) люминесцентные реакции с образованием тройных комплексных соединений (в водных растворах), то есть люминесцентные цветные твёрдофазные реакции; 4) люминесценция твёрдых тел.

Для количественных определений в основном применяют 1-ю и 2-ю группы методов.

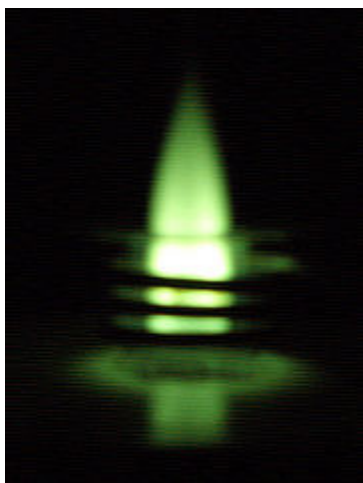
*Атомно-эмиссионный спектральный анализ* – это совокупность методов элементного анализа, основанных на изучении спектров испускания свободных атомов и ионов в газовой фазе. С этой целью пробу нагревают (в пламени, электрической дуге, плазме), при этом происходит испарение и атомизация вещества, которая сопровождается возбуждением некоторой части атомов вследствие перехода электронов на более высокие энергетические состояния в соответствии с принципом квантования. Спустя  $10^{-9} - 10^{-7}$  с возбуждённые электроны переходят из состояния с большей энергией в состояние с меньшей энергией, испуская фотон. Разница энергий уровней определяет энергию испущенного фотона, и, следовательно, его частоту в соответствии с известной формулой:  $E = h\nu$ . Поскольку строение электронных оболочек индивидуально для каждого элемента, то и эмиссионные спектры также неповторимы; это позволяет проводить качественный анализ. Количество испускаемых квантов (интенсивности спектральных линий) пропорционально концентрации испускающего вещества. Излучение разлагают в спектр и определяют интенсивность индивидуальных спектральных линий. Связь между интенсивностью спектральной линии ( $I$ ) и концентрацией ( $c$ ) можно представить эмпирическим выражением – уравнением Ломакина – Шейбе:  $I = ac^b$ , здесь  $a$ ,  $b$  – константы. Эмиссионные спектры регистрируют в наиболее удобной оптической (ультрафиолетовой и видимой) области длин волн от  $\sim 200$  до  $\sim 1000$  нм, поэтому возбуждающиеся внешние (валентные) электроны называют оптическими, как и сам метод. Таким образом, процесс атомно-эмиссионного спектрального анализа состоит из следующих основных звеньев: пробоподготовка (подготовка образца); испарение анализируемой пробы; диссоциация-атомизация её молекул; возбуждение излучения атомов и ионов элементов пробы; разложение возбужденного излучения в спектр; регистрация спектра; идентификация спектральных линий – с целью установления элементного состава пробы (качественный анализ); измерение интенсивности аналитических линий элементов пробы, подлежащих количественному определению; нахождение количественного содержания элементов с помощью установленных предварительно градуировочных зависимостей интенсивности свечения от концентрации ядер в пробе.

Методы АЭСА отличаются способом возбуждения спектра, способом введения пробы в излучающую плазму, типом спектральных приборов, разлагающих спектр по длинам волн, методами регистрации спектра и обработки полученной информации. Определяющими для таких параметров, как предел обнаружения и погрешность анализа, являются способы возбуждения спектра и связанный с ними способ введения пробы в плазму разряда.

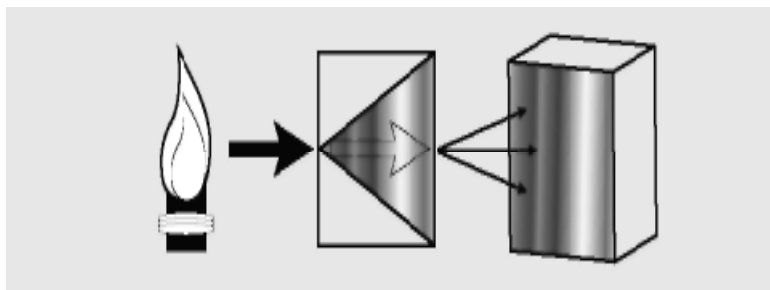
В эмиссионной спектроскопии используют следующие способы возбуждения вещества: пламя ( $2000 - 3000$  °C) – для атомов с низким потенциалом возбуждения; электрическую дугу (до  $8000$  °C) – получающий дуговой спектр принадлежит, в основном, нейтральным молекулам; электрическую искру (до  $40000$  °C) – искровой спектр принадлежит, в основном, ионам. Наиболее распространенным до настоящего времени является спектрографический анализ с возбуждением спектра в дуговом разряде. Однако этот способ возбуждения спектра

характеризуется нестабильностью условий возбуждения спектра в дуге и неконтролируемым поступлением пробы в плазму разряда.

В настоящее время применяется в основном метод возбуждения спектра в индуктивно-связанной плазме (ИСП), обеспечивающий значительно меньшую погрешность определения и более высокую чувствительность по сравнению с дуговыми источниками света (см. рис. 4.7.4, 4.7.5). ИСП – это тип плазмы, возбуждаемой переменным магнитным полем при помощи индукционной катушки. ИСП также имеет другое название: индукционная плазма. ИСП зажигается и поддерживается за счёт циклических индуцированных вихрей электрического тока свободных электронов (и ионов) в плазме. Для возбуждения ИСП обычно используется переменное электромагнитное поле в области частот 1 – 100 МГц.



*Рис. 4.7.4 Горелка аналитической ИСП, наблюдаемой через тёмное зелёное стекло.*



*Рис. 4.7.5 Упрощенная схема оптической эмиссионной спектрометрии с ИСП.*

Главное отличие ИСП от емкостной плазмы в том и заключается, что ИСП возбуждается (индуцируется) магнитным полем, в то время как емкостная плазма возбуждается и поддерживается за счёт электрического поля (постоянного или переменного). При прочих равных условиях ИСП характеризуется существенно более высокой концентрацией электронов по сравнению с емкостной плазмой. Например, с применением защитного оборудования можно проводить анализ высокоактивных растворов на содержание Al, Ba, Cd, Cr, Fe, Ni, Sr, Zr, Mo, Ce, Eu, La, Nd, Pr, Y, Pd, Rh, Ru с предварительным разбавлением до концентраций 0,06–3 мкг/мл. Обычная погрешность анализа составляет 1–5 %.

Атомно-эмиссионный спектральный анализ является в настоящее время одним из наиболее распространенных методов анализа ядерных материалов, в том числе продуктов переработки ядерного топлива. Этот метод анализа многоэлементный, он позволяет экспрессно определять одновременно большое количество элементов из одной аликвоты раствора или из одной навески в широком интервале концентраций с приемлемой точностью, при использовании малой массы пробы. Спектральное определение малых количеств урана, плутония и тория представляет собой сложную задачу, так как чувствительность обнаружения этих элементов невелика по следующим причинам: низкая летучесть оксидов урана и тория; сложность спектра с большим числом линий малой интенсивности (например, для урана в области 2400 – 2600 Å наблюдается более 2000 спектральных линий); уран, плутоний и торий относятся к элементам с высокой энергией возбуждения. Поэтому спектральное определение продуктов деления и радиоактивного распада, а также примесей, имеет большее значение, чем спектральный анализ собственно урана, тория и плутония. Строго говоря, спектральный анализ главным образом используют для определения примесей, а не основного компонента.

*Рентгенофлуоресцентный анализ.* Рентгеноспектральный флуоресцентный анализ (РФА) является одним из важнейших методов определения элементного состава промышленных и

природных материалов. РФА основан на возбуждении характеристического рентгеновского излучения химических элементов, входящих в состав анализируемого образца, разложении излучения, возникающего в образце, в энергетический спектр, и измерении интенсивностей спектральных линий определяемых элементов. Измеренные интенсивности линий непосредственно связаны с концентрациями определяемых элементов.

Основными преимуществами метода являются: универсальность, то есть возможность определения почти всех химических элементов, за исключением наиболее легких, на едином приборе по единой схеме в широком диапазоне концентраций, начиная от  $10^{-4}$  –  $10^{-3}$  % до 100 %; простота подготовки проб к анализу, в частности, для некоторых приборов, возможность обойтись вообще без подготовки проб; высокая точность анализа, ограничиваемая лишь представительностью проб и надежностью данных о составе стандартных образцов, используемых для градуировки; высокая производительность и экспрессность анализа (в зависимости от типа прибора, количества определяемых элементов и требований к точности анализа измеряются минутами или даже секундами).

В настоящее время можно определять элементы от натрия (в последних приборах – бериллия) до урана (плутония) при содержании этих элементов от 0,3 ppm (мг/кг) при высокой экспрессности: качественный анализ одной пробы занимает от 1 мин, количественный анализ одной пробы – от 3 мин., одно элементоопределение – от 10 до 100 с.

Из электрохимических методов для прецизионных определений урана, плутония и тория в ядерных материалах наиболее распространенными являются методы потенциометрического и кулонометрического титрования.

*Потенциометрия* – это метод определения различных физико-химических величин, основанный на измерении разности потенциалов между двумя электродами (индикаторным и электродом сравнения) в отсутствие тока во внешней цепи, то есть на измерении электродвижущих сил (ЭДС) обратимых гальванических элементов. Потенциометрический анализ основан на том, что потенциал, возникающий в анализируемом растворе на границе электрод-раствор, является функцией концентрации компонентов соответствующих окислительно-восстановительных систем. Зависимость равновесного потенциала ( $E_p$ ) электрода от потенциалопределяющих ионов выражается уравнением Нернста:

$$E_p = E^0 + \frac{RT}{nF} \ln \frac{C_{ок}}{C_{восст}}, \quad (4.7.1)$$

где  $E^0$  – стандартный (нормальный) электродный потенциал данной окислительно-восстановительной системы, т.е. потенциал, который возникает, когда концентрации составляют 1 г-экв./литр (1-нормальная концентрация);

$R$  – универсальная газовая постоянная;

$T$  – абсолютная температура;

$n$  – число электронов, принимаемых (+) или отдаваемых (–) одним ионом определяемого вещества;

$F$  – число Фарадея;

$C_{ок}, C_{восст}$  – концентрации окисленной и восстановленной формы потенциалопределяющего иона.

При проведении потенциометрического титрования (ПТ) за протеканием реакции позволяет следить изменение потенциала электрода. При определении концентрации анализируемого иона методом ПТ применяются обычные приемы объемного анализа: связывание определенного иона в осадок (то есть уменьшение концентрации потенциалопределяющих ионов в растворе) – осадительное потенциометрическое титрование; связывание определенного потенциал образующего иона в комплекс – комплексометрическое ПТ; перевод анализируемого иона в другое валентное состояние – окислительно-восстановительное ПТ. Конечную точку титрования устанавливают по точке перегиба на кривой «потенциал – объем титранта». Для урана и плутония, благодаря их поливалентности, чаще используют окислительное титрование, как и в обычных титриметрических методах.

Титрование растворами сульфата церия (4+) применяется для определения миллиграммовых количеств урана и плутония при их совместном присутствии в атмосфере

азота. Титрование урана (4+) проводят в 4N серной кислоте, плутоний в этих условиях не титруется, поскольку он нацело закомплексован сульфат-ионами и не мешает определению урана. После этого раствор разбавляют водой до концентрации серной кислоты 1N и проводят титрование плутония. Точность определения при этом составляет  $\pm 0,3\%$  отн.

Использование перманганатного или сульфатно-цериевого титрования позволяет провести количественное определение урана, ванадия и железа при их совместном присутствии по соответствующим скачкам потенциала после предварительного восстановления (рис. 4.7.6).

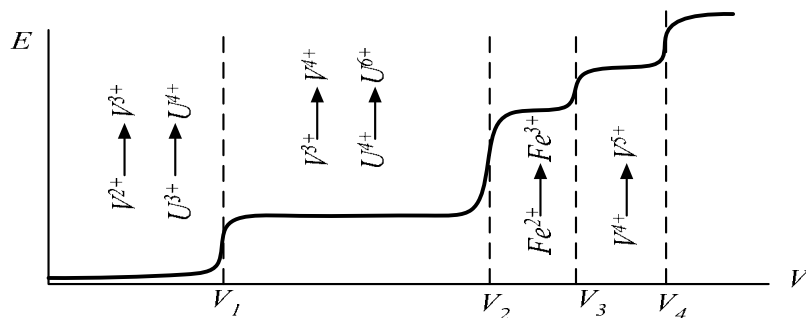
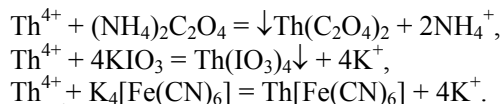


Рис. 4.7.6 Окислительное титрование урана, ванадия и железа при их одновременном присутствии ( $E$  – равновесный потенциал индикаторного электрода,  $V$  – объем титранта).

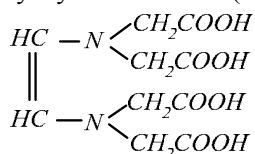
Сначала проводят титрование при температуре  $80^{\circ}\text{C}$  в инертной атмосфере до точки эквивалентности (А); в это время протекают реакции:  $\text{V}^{2+} \rightarrow \text{V}^{3+} + \bar{e}$ ,  $\text{U}^{3+} \rightarrow \text{U}^{4+} + \bar{e}$ . Этой точкой эквивалентности нельзя пользоваться, поскольку доля урана, находящегося в форме (3+); не соответствует полному содержанию урана в растворе. По мере дальнейшего титрования до точки (В) происходит дальнейшее окисление ванадия и урана:  $\text{V}^{4+} \rightarrow \text{V}^{5+} + \bar{e}$ ,  $\text{U}^{4+} \rightarrow \text{U}^{6+} + \bar{e}$ . После этого раствор охлаждают до комнатной температуры и титруют далее; в точке (С) завершается реакция:  $\text{Fe}^{2+} \rightarrow \text{Fe}^{3+} + \bar{e}$ . Раствор снова нагревают до  $60^{\circ}\text{C}$  и титруют до точки (Д):  $\text{V}^{4+} \rightarrow \text{V}^{5+} + \bar{e}$ . Объем реагента, пошедшего на титрование урана, можно определить по следующему алгоритму, например, если на титрование ванадия пошло  $(V_4 - V_3)$  мл реагента; на титрование железа пошло  $(V_3 - V_2)$  мл, на титрование урана  $V = (V_2 - V_1) - (V_4 - V_3)$ .

Восстановительное титрование уранила растворами солей хрома (2+) и титана (3+), в отличие от рассмотренного выше окислительного титрования, характеризуется пониженной точностью.

Ввиду того, что в водных растворах торий присутствует только в одном – четырехвалентном – состоянии, окислительно-восстановительное титрование его невозможно. Поэтому в потенциометрии тория применяются два типа реакций: перевод ионов тория (4+) в осадок (оксалат, иодат) и связывание в комплексные соединения (ферроцианид и другие) по реакциям:



Из органических комплексобразователей чаще других применяется этилендиаминтетрауксусная кислота (ЭДТУК, ЭДТА) и ее соли (комплексон III):



Сама кислота и ее соли диссоциируют по первым двум ступеням:  $\text{RH}_4 \rightleftharpoons \text{RH}_2^{2-} + 2\text{H}^+$ , то есть реакция комплексообразования протекает по схеме:  $\text{Th}^{4+} + 2\text{RH}_4 \rightleftharpoons \text{Th}(\text{RH}_2)_2^{2+} + 2\text{H}^+$ . В сильнокислых растворах при величине  $\text{pH} = 1 - 2$  эти комплексы еще не диссоциируют, то есть высокая кислотность позволяет подавить помехи со стороны катионов с меньшим зарядом (1+,



2+, 3+), так как константы устойчивости ториевых комплексов имеют намного большие значения, чем у менее заряженных ионов. Это определяет высокую избирательность метода.

*Кулонометрический метод* основан на законах электролиза Фарадея, устанавливающих связь между количеством электричества, прошедшим через раствор, и количеством вещества, подвергнувшись электролитическому превращению под действием тока. Законы Фарадея формулируются следующим образом:

- количество электропревращенного (восстановленного или окисленного) в процессе электролиза вещества прямо пропорционально количеству прошедшего электричества;
- массы различных веществ, выделенных или растворенных при прохождении одного и того же количества электричества, пропорциональны их электрохимическим эквивалентам.

Электрохимический эквивалент – это масса вещества, выделившегося на электроде (или растворившегося с электрода) в процессе электролиза при протекании единицы количества электричества, то есть 1 Кл.

Согласно закону Фарадея для электрохимического превращения одного грамм-эквивалента любого вещества требуется 96484 кулона электричества. Количественный расчет кулонометрического метода основан на уравнении:

$$G = \frac{MQ}{96484n}, \quad (4.7.2)$$

где  $G$  – количество вещества, претерпевшее электрохимическое превращение, г;  $M$  – атомный или молекулярный вес вещества;  $Q$  – число кулонов электричества, прошедшее через раствор;  $n$  – число электронов, участвующих в электродном процессе.

Определяемое вещество может непосредственно окисляться или восстанавливаться на электроде (первичный кулонометрический анализ), или же, не претерпевая электрохимического превращения, реагировать в растворе с соединениями, возникающими под действием тока (вторичный кулонометрический анализ – кулонометрическое титрование). Кулонометрическое титрование получило широкое применение в анализе, так как оно позволяет определять большое число элементов, которые сами не способны претерпевать электрохимического превращения со 100%-ным использованием тока.

В настоящее время для прецизионного определения актиноидных и большинства других элементов используются кулонометрия с контролируемым потенциалом (ККП) и кулонометрия с постоянным током (КПТ). Для всех кулонометрических методов обязательны следующие условия: практически 100 %-я эффективность электропревращения анализируемого вещества, наличие надежного способа определения момента завершения процесса электрохимической реакции, точное определение количества электричества, прошедшее через ячейку. Среди кулонометрических методов анализа перспективным является кулонометрия при контролируемом потенциале, основанная на проведении количественного электролиза электрохимически активных компонентов в растворах. Метод ККП в настоящее время отличается высокой точностью, превосходящей точность других методов анализа, селективностью и широким диапазоном количеств анализируемого вещества. Точность метода может приближаться к точности определения числа Фарадея, которая составляет в настоящее время 0,001 %. Таким образом, метод является вторым абсолютным методом после весового анализа, которыми располагает аналитическая химия. Этот метод не требует химической стандартизации и сам позволяет проводить химическую стандартизацию на основе электрических эталонов: ампер, секунда, кулон, Фарадей.

В основе метода прямой кулонометрии с контролируемым потенциалом при определении урана лежит восстановление шестивалентного урана до четырехвалентного в кислых растворах в кулонометрах с ртутным катодом. Метод широко используется как для прецизионных определений содержания урана в растворах урана, так и для анализа урана в продуктах ядерного цикла. В последнем случае электролиз проводился после экстракционного отделения урана от мешающих примесей. Суммарная погрешность определения урана для проб 0,5–5 мг урана достигает 0,1. Кулонометрическое определение при контролируемом потенциале, основанное на обратимой электродной реакции  $\text{Pu(IV)/Pu(III)}$ , широко используется при

прецизионных определениях массовой доли плутония в растворах, металлическом плутонии и смешанных уран-плутониевых оксидах. Для определения используется 2–4 мг плутония. Суммарная погрешность определения плутония не превышает 0,15 %.

Основным недостатком потенциометрических и кулонометрических методов является влияние элементов, имеющих близкие потенциалы электрохимических превращений, на результаты анализа.

Кулонометрический анализ имеет ряд преимуществ по сравнению с другими аналитическими методами: он позволяет определять очень малые количества веществ с большой точностью; можно определять вещество в количестве до  $10^{-12}$  г/экв.; метод позволяет использовать при определении ряда веществ такие нестойкие реактивы, как Cr (II), Ti (III), Sn (II) и другие, применение которых при обычном анализе связано с большими трудностями. При выполнении кулонометрического титрования нет необходимости предварительно готовить точные стандартные растворы, устанавливать их титры и измерять их объемы. Стандартом в данном методе является единица количества электричества (кулон). Во время кулонометрического титрования раствор не разбавляется, что особенно важно при работе с очень разбавленными растворами. Метод имеет большие возможности для автоматизации процесса определения веществ.

#### **4.7.2 Масс спектрометрия**

Масс спектрометрический метод относится к одному из наиболее развитых видов анализа, имеющего очень широкий спектр применения. Этот метод, сегодня рутинно используется в тысячах лабораториях и предприятий мира. Бурное развитие техники масс-спектрометрического анализа в последнее десятилетие определяется растущими потребностями биологии, биохимии, генетики и других наук, связанных с анализом органических соединений. Тем не менее, данный вид анализов сохраняет за собой позиции ведущего в области прецизионного определения изотопного состава урана, плутония, а также других изотопов неорганических материалов. Более того, это направление его использования также продолжает развиваться, чему способствует, в частности потребность в анализе микрочастиц в целях обеспечения гарантий нераспространения (см. следующий раздел).

Современный масс-спектрометр базируется на основополагающей работе, сделанной сэром Дж. Дж. Томсоном в Кэвэндишевской лаборатории Кембриджского университета. Исследования Томсона, приведшие к открытию электрона в 1897 году, также привели к созданию первого масс-спектрометра, построенного им для изучения влияния электрического и магнитного полей на ионы, генерируемые в остаточном газе на катоде рентгеновской трубки. Томсон обратил внимание, что эти ионы движутся по параболическим траекториям, пропорциональным отношениям их массы к заряду. В 1906 году Томсон получил Нобелевскую премию по физике за «Выдающиеся заслуги в теоретическом и экспериментальном изучении электропроводимости газов». Период с 1930-ых по начало 1970-ых годов отмечен выдающимися достижениями в области масс-спектрометрии. К концу Первой мировой войны работы Френсиса Астона и Артура Демпстера привели к значительному улучшению точности и воспроизводимости измерений на масс-спектрометрах. Позднее Альфред Нир воплотил эти достижения вместе со значительным продвижением в вакуумной технике и электронике в конструкцию масс-спектрометра, значительно сократив его размеры. Нир и Джонсон впервые построили масс-спектрометр с двойной фокусировкой. Еще раньше, в 1946 году, Уильям Стивенс предложил концепцию время-пролетных анализаторов, способных разделять ионы путем измерения скоростей их движения по прямому пути к коллектору. В середине 1950-ых годов Вольфганг Пол разработал квадрупольный масс-анализатор. Этот анализатор способен разделять ионы с помощью осцилирующего электрического поля. Другой инновационной разработкой Пола было создание квадрупольной ионной ловушки, специально предназначенной для захвата и измерения масс ионов. Первая ионная ловушка стала коммерчески доступной в 1983. Сегодня квадрупольные и квадрупольные ионные ловушки являются наиболее распространенными масс-анализаторами в мире, и за свои инновационные работы Вольфганг Пол получил в 1989 году Нобелевскую премию по физике. В 1950-е годы впервые были соединены газовый хроматограф и масс-спектрометр (Голке, Маклафerti и Рихаге). Затем появились новые методы ионизации – бомбардировка быстрыми атомами

(Барбер), химическая ионизация (Тальрозе, Филд, Мансон), полевая десорбция/ионизация (Беки), лазерная десорбция/ионизация, ассилируемая матрицей - MALDI (Танака, Карас, Хилленкамф) ионизация в электроспрее - ESI (Доул, Фенн), ионизация в индуктивно-связанной плазме (Фассел). Были разработаны новые приборы для новых применений – масс-спектрометры ионно-циклотронного резонанса (Хиппл) и, затем, с Фурье-преобразованием сигнала (Комиссаров, Маршалл), тройные квадрупольные тандемные масс-спектрометры (Йоуст, Энке). Рассмотрение всего разнообразия методов и приборов для масс-спектрометрического анализа не входит в задачи курса NS4. Поэтому в данном разделе рассматриваются основы масс-спектрометрии, в которых акцент сделан на применение методов, используемых для проведения элементного и изотопного анализа ядерных и радиоактивных материалов и веществ.

#### Основы метода

Масс-спектрометрия имеет дело с материальным веществом, которое, как известно, состоит из мельчайших частиц – молекул и атомов. Масс-спектрометры устанавливают что это за молекулы (то есть, какие атомы их составляют, какова их молекулярная масса, какова структура их расположения) и что это за атомы (то есть их изотопный состав). Существенное отличие масс-спектрометрии от других аналитических физико-химических методов состоит в том, что оптические, рентгеновские и некоторые другие методы детектируют излучение или поглощение энергии молекулами или атомами, в то время как масс-спектрометры оперируют самими частицами вещества. Масс-спектрометрия измеряет их массы, вернее соотношение массы к заряду. Для этого используются законы движения заряженных частиц материи в магнитном или электрическом поле. Таким образом, масс-спектрометрия (масс-спектроскопия, масс-спектрография, масс-спектральный анализ, масс-спектрометрический анализ) – метод исследования вещества путём определения отношения массы к заряду ( $m/e$ ). Масс-спектрометр, соответственно, – прибор, предназначенный для разделения ионов в соответствии с отношением массы к заряду под действием электрического или магнитного полей.

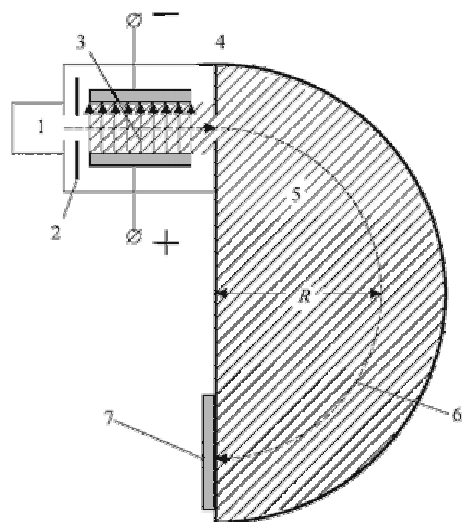


Рис. 4.7.7. Схема масс-спектрометра

- 1 – ионный источник;
- 2, 4 – щелевые диафрагмы;
- 3 – область однородных и постоянных электрического и магнитного полей (силовые линии электрического поля направлены вдоль плоскости рисунка и показаны стрелками, область магнитного поля показана штриховкой, его силовые линии перпендикулярны плоскости рисунка);
- 5 – область однородного и постоянного магнитного поля (силовые линии перпендикулярны плоскости рисунка);
- 6 – траектория иона;
- 7 – детектор.

Каждый масс-спектрометр, независимо от деталей конструкции, состоит из четырех функциональных элементов (см. рис. 4.7.7):

- источника, где образуется пучок ионов, представляющих пробу;
- анализатора, в котором ионы разделяются во времени и пространстве;
- детектора, где ионы, разделенные по массам в анализаторе, детектируются и измеряются;
- вакуумные системы, обеспечивающие рабочие условия для всех перечисленных процессов.

Иногда систему для напуска пробы и различные регистрирующие приборы рассматривают как части вакуумной системы и детектора соответственно.

Несмотря на то, что методами масс-спектрометрии можно изучать как положительные, так и отрицательные ионы, масс-спектрометры применяют в основном для исследования положительных ионов, так как у большинства источников эти ионы образуются в гораздо больших количествах.

Необходимо отметить, что, начиная от ионного источника и до детектора, масс-спектрометр представляет собой вакуумный прибор. Довольно глубокий вакуум обеспечивает беспрепятственное движение ионов внутри масс-спектрометра. При его отсутствии ионы рассеются и рекомбинируют (превратятся обратно в незаряженные частицы).

### **Ионизация**

Масс-спектральные методы определения следов элементов можно лучше всего охарактеризовать типом применяемого источника ионов. Выбор подходящего источника определяется анализируемой пробой (газ, твердое тело), количеством исследуемого материала, а также необходимой информацией (диапазон концентраций, чувствительность, точность, анализ поверхности или всего объема пробы и так далее).

Задача источника ионов двойная. Во-первых, получение с достаточной эффективностью предпочтительно моноэнергетических ионов, представляющих анализируемую пробу. Во-вторых, формирование ионного пучка, подходящего для поступления в масс-анализатор.

Существует много методов получения ионов, и относительное значение этих методов непрерывно меняется по мере развития новых и усовершенствования старых.

Наиболее старым и до сих пор активно применяемым является *источник ионов с электронной бомбардировкой* (электронным ударом). Исследуемый материал в виде газа вводят в эвакуированную (вакуумную) камеру, где он подвергается бомбардировке пучком электронов. Можно поместить вещество в конденсированной фазе в источник ионов и там его испарить. Электроны могут быть получены путем, например, термоэмиссии с нагреваемого катода. Направление потока электронов перпендикулярно направлению потока нейтрального газа. Электроны, легкие по сравнению с атомами и молекулами отрицательно заряженные частицы, сталкиваясь с атомами и молекулами, вызывают их ионизацию. Энергия электронов определяется электрическим полем между катодом и ионизационной камерой, напряжение которого часто составляет 70–80 В, что соответствует максимуму сечения ионизации для большинства однозарядных ионов. Интенсивность пучка электронов обычно стабилизирована. Ускорение и формирование ионного пучка происходит в анализирующей системе спектрометра.

#### *Термоионный источник*

Термоионный тип источников был предложен Демпстером и разработан Кунсманом. Сущность метода заключается в следующем. Когда материал с (первым) ионизационным потенциалом  $I$  (эВ) нагревается на поверхности до температуры  $T$  (К) с работой выхода  $W$  (эВ). Наряду с нейтральными частицами существует определенная вероятность испарения положительных и отрицательных ионов. Относительная интенсивность потока положительных ионов  $n^+$  и нейтральных частиц определяется уравнением Лангмюра-Саха:

$$n^+ / n^0 = \exp[e(W - I) / kT] = \exp[1606(W - I) / T], \quad (4.7.3)$$

где  $k$  – постоянная Больцмана;

$e$  – заряд электрона.

Из уравнения 4.7.3 следует, что термоионный источник является очень избирательным. Для большей эффективности разность  $W - I$  должна быть положительной. Если разность  $W - I$  отрицательна, то существует единственный выход – увеличение температуры. Повышение температуры, однако, ограничивается летучестью пробы. Работа выхода материала подложки должна быть велика, а давление материала достаточно низко. Для этих целей часто используют в качестве испаряющих подложек (катодов) платину, вольфрам, рений и окислы вольфрама, для которых значение  $W$  достигает 6,5 эВ.

В простом термоионном источнике пробу в виде раствора помещают непосредственно на катод, откуда она испаряется.

Современные масс-спектрометры с термоэмиссией (TIMS) являются часто используемым прибором для высокоточного определения изотопного состава урана и плутония (см. рис.4.7.8).

Такие приборы обычно позволяют анализировать обогащение урана с точностью до 0,014 %, а изотопного состава плутония – 0,02 %.

#### *Источник с ионной бомбардировкой (SIMS)*

В этом источнике твердая проба бомбардируется положительными ионами с энергией 20–1000 эВ. В результате соударений с поверхностью пробы выбиваются нейтральные и заряженные частицы (распыление).

В качестве бомбардирующих частиц применяют ионы редких газов (аргон), благодаря их химической инертности. Кроме того, эти газы легко можно удалить из решетки после бомбардировки. Массу и энергию бомбардирующих ионов, а также угол, под которым идет бомбардировка, определяют параметры прибора.

#### *Вакуумный разряд*

В методе вакуумного разряда для получения ионов используется разность потенциалов между электродами, изготовленными из исследуемого материала. Это напряжение повышается до уровня пробоя. Существует три типа разрядных источников: высокочастотная искра; вакуумный вибратор; пульсирующая дуга постоянного тока.

В высокочастотной искре переменное напряжение в 25–100 кВ генерируется в виде импульсов продолжительностью в несколько микросекунд. Число импульсов в секунду обычно меняется от 1 до  $10^4$ . Механизм образования ионов в искре очень сложный и продолжает изучаться. Несмотря на то, что эффективная температура искры может быть очень высокой ( $\sim 10^4$  К), средняя температура разряда обычно ниже 500 К, поскольку сами импульсы очень короткие.

В источнике, типа вакуумный вибратор, между двумя электродами поддерживается разность потенциалов 10–30 В. Один электрод неподвижен, другой совершает механические колебания и касается неподвижного электрода с заданной частотой. Как только нарушается контакт между электродами, возрастает контактное сопротивление, повышается температура и плавятся небольшие объемы металла. Образующийся жидкий мост разрушается по мере раздвижения электродов и возникает электрическая дуга.

В горячем дуговом источнике постоянного тока оба электрода неподвижны. Разность потенциалов между электродами постепенно возрастает благодаря параллельному включенному конденсатору. После включения искры конденсатор разряжается и начинается новый цикл.



Рис. 4.7.8. Внешний вид TIMS TRITON



Рис. 4.7.9. Внешний вид ICP-MS Agilent-7700

#### *Другие методы*

Одним из наиболее распространенных методов анализа неорганических материалов, наряду с TIMS, является ионизация в так называемой индуктивно-связанной плазме, о которой кратко было рассказано в предыдущем разделе (см. рис.4.7.9). Индуктивно-связанная плазма (ИСП, ICP) образуется внутри горелки, в которой «горит» инертный газ (обычно, аргон). Другими словами горелка представляет собой поток ионов инертного газа высокой энергии (температуры). Когда в плазму аргонной горелки попадают атомы и молекулы, они моментально превращаются в ионы. Для того, чтобы ввести атомы и молекулы интересующего материала в плазму, их обычно растворяют в воде и распыляют в плазму в виде мельчайшей

взвеси. Другой метод состоит в том, чтобы превратить вещество в газ. Например, это делают с помощью мощного лазерного луча, который «взрывает» кратер в подставленном под него образце материала, переводя небольшую его часть в газообразное состояние (лазерная абляция).

### **Масс-анализаторы**

Задача масс-анализаторов двойная: во-первых, отделение ионного луча массы  $m$  от другого луча с близкой массой  $m + \Delta m$ , и, во-вторых, увеличение интенсивности разрешенных лучей. Первое действие называется дисперсией, второе – фокусировкой. Электрические и магнитные поля и их комбинации играют роль призм и линз. Для определения траектории ионов необходимо знание их исходного положения, скорости вхождения в анализатор и пространственного и/или временного распределения поля (или полей). Основные характеристики заряженных частиц – количество движения, энергия и скорость. Для определения отношения  $m/e$  необходимо измерить только две из этих величин.

#### *Анализ масс при помощи магнитного поля*

Когда электрический заряд  $e$  движется со скоростью  $v$  через однородное магнитное поле напряженностью  $B$  перпендикулярно этому полю, на этот заряд действует сила  $Bev$ . Направление действия силы перпендикулярно направлению движения заряда и направлению поля (правило левой руки). Траекторией ионов является окружность. Поскольку они движутся под действием силы, постоянной по величине, но направление этой силы всегда перпендикулярно скорости. Эта сила  $Bev$  уравнивается центростремительной силой  $\frac{mv^2}{r}$

, и радиус кривизны траектории  $r$  зависит от  $m/e$ :

$$r = mv / Be. \quad (4.7.4)$$

Таким образом, однородное магнитное поле можно использовать для разделения ионов различных масс, если только их скорость (или кинетическая энергия) постоянны. Ионный пучок известной энергии получается в результате ускорения ионов в поле с разностью потенциалов  $U$  в ионном источнике.

Учитывая уравнение:

$$eU = \frac{mv^2}{2}, \quad (4.7.5)$$

получается уравнение, которое часто называют основным уравнением масс-спектрометрии:

$$r = (2mU / B^2 e)^{1/2} = 143,95 \sqrt{MU} / B, \quad (4.7.6)$$

где  $M$  – масса однозарядного иона в а.е.м.

Согласно уравнению 4.7.6, например, ион  $^{14}N^+$ , ускоренный до 2000 эВ в магнитном поле 1000 гаусс опишет круг радиусом 24 см. Радиус траектории иона  $^{15}N^+$  при тех же условиях будет на один сантиметр больше.

Магнитное поле фактически является анализатором количества движения, и только единственное условие постоянства скорости ионов делает его чувствительным к массе ионов. Действительно, магнитное поле можно использовать как фильтр количества движения, позволяющий только ионам с заранее заданным количеством движения покинуть анализатор через небольшое отверстие в выходной плоскости.

Несмотря на то, что в электростатическом поле почти все ионы приобретают одинаковую скорость (поле действует как фильтр скорости), различие в первоначальных направлениях требует фокусировки для того, чтобы избежать перекрытия уже разрешенных компонент. Ионный луч с половиной угла расхождения  $\alpha$  после одного оборота ( $360^\circ$ ) в магнитном поле снова вернется в исходную точку. Поскольку источник ионов и детектор этих ионов не могут находиться в одной точке, необходимо использовать приблизительную фокусировку луча на половине траектории ( $180^\circ$ ). Изображение входной щели в фокальной точке фактически шире самой входной щели, и ошибка фокусировки (сферическая аберрация) пропорциональна  $R\alpha$ .

#### *Электростатические анализаторы*

Когда ион, ускоренный в поле с разностью потенциалов  $U$ , попадает в радиальное электростатическое поле с напряженностью  $E$ , траектория этого иона будет окружностью радиуса:

$$r = 2U / E. \quad (4.7.7)$$

Чтобы ион  $^{14}\text{N}^+$  описал окружность радиусом 25 см в электростатическом анализаторе, необходимо поле порядка 160 В/см.

Поскольку в уравнение 4.7.7 не входит масса, считается, что электростатический анализатор нельзя использовать для анализа масс. Однако с его помощью можно анализировать кинетическую энергию, так как изменения  $U$  приводят к изменению радиуса. Фактически в выходной плоскости получается энергетический спектр ионного луча, если он неоднороден по энергии. Электростатическое поле поэтому можно применять в качестве энергетического фильтра, работающего при помощи отверстия в выходной плоскости. Ионы с энергией, отличающейся от заданной, будут отклонены пластинами поля. Это свойство используется в анализаторах с двойной фокусировкой (см. далее по тексту раздела).

Радиальное электростатическое поле также обладает свойствами направленного фокусирования. Фокусировка достигается в том случае, если угол отклонения равен  $\pi/\sqrt{2}$  радиан ( $127^\circ$ ).

#### *Время-пролетные анализаторы*

Ион, обладающий энергией  $eU$ , движется со скоростью:

$$v = (2eU / m)^{1/2}. \quad (4.7.8)$$

В пучках ионов равной энергии скорость тяжелых ионов будет меньше скорости легких. Поэтому короткий импульс по мере движения по трубке будет диспергироваться на группы одинаковой массы. В этом заключается принцип временного спектрометра. Такой спектрометр можно применять для определения масс моноэнергетического пучка ионов.

Несмотря на то, что существует много типов время-пролетных приборов, они не находят широкого применения для определения следов элементов или изотопного состава материалов.

#### *Анализаторы с двойной фокусировкой*

В анализаторах с двойной фокусировкой комбинация действия магнитного и электростатического полей достигается фокусировка по направлению ионов и по начальной скорости. В тоже время остается свойство разделения масс. Действие этих полей может быть либо одновременным, либо последовательным.

Совершенная двойная фокусировка достигается в скрещенных однородных магнитном и электрическом полях, когда пути ионов, двигающихся в плоскости, перпендикулярной обоим полям, представляют собой трохлоиду. Обычно применяют траектории в виде растянутой циклоиды.

Чаще применяют анализаторы, у которых цилиндрический конденсатор и однородное магнитное поле в виде сектора расположены последовательно один за другим. Когда разброс ионов по энергиям достаточно велик и обычный электростатический анализатор не обеспечивает постоянную скорость, необходимую для работы магнитного анализатора, требуется применение энергетического фильтра.

Дисперсия по скорости в электростатическом анализаторе делается равной и противоположной по знаку дисперсии, полученной с магнитным полем. Таким путем устраняется абберация скорости ионного изображения, но сохраняется свойства фокусировки по направлению. Комбинация полей действует аналогично призме и толстым ахроматическим цилиндрическим линзам в оптике. Радиальное электростатическое поле действует как коллиматор (энергетический фильтр), магнитное поле действует как призма, компенсирующая хроматическую абберацию коллиматора.

#### *Другие анализаторы*

Перечисленные типы анализаторов типичны для проведения анализов ядерных и радиоактивных материалов. Однако, в настоящее время, в масс-спектрометрии развито достаточно много новых техник, которые в основном используются для анализа органических соединений, однако об их существовании следует упомянуть.



*Квадруполь.* В течение долгого времени проводились поиски альтернатив использованию магнита в качестве масс-анализатора. Первым успеха добился профессор Стэнфордского университета Роберт Финниган, создавший в 1967 году первый коммерческий хромато-масс-спектрометр с квадрупольным анализатором. Квадруполь представляет собой четыре стержня, к которым попарно в противоположной полярности подается определенная комбинация постоянного и радиочастотного переменного напряжений. Ионы, влетающие параллельно оси этих стержней, попадают в гиперболическое поле и оно, в зависимости от соотношения их массы и частоты, пропускаются этим полем или не пропускаются дальше. Создание квадрупольных масс-анализаторов стало революцией в масс-спектрометрии. Магнитные масс-спектрометры требуют использования высоких напряжений (тысячи вольт), а квадрупольные нет, и это упрощает его конструкцию, меньшие размеры вакуумной части упрощают систему создания вакуума. Масс-спектрометры уменьшились в размерах, стали проще в эксплуатации и, что самое главное, намного дешевле, что открыло возможность использовать этот аналитический метод многим тысячам пользователей.

*Ионно-циклотронный резонанс.* Благодаря, прежде всего, потребностям протеомики, метаболомики, липидомики и анализа биополимеров, все более широкое распространение получил в последнее время масс-анализатор на основе ионно-циклотронного резонанса. Получение уникальной информации стало возможно благодаря применению масс-анализатора ионно-циклотронного резонанса с Фурье-преобразованием. В этом анализаторе ионы влетают в сильное магнитное поле и вращаются там по циклическим орбитам (как в циклотроне, ускорителе элементарных частиц). Такой масс-анализатор обладает определенными преимуществами: имеет очень высокое разрешение, диапазон измеряемых масс весьма широк, может анализировать ионы, получаемые всеми способами. Однако для своей работы он требует сильного магнитного поля, а значит, использования сильного магнита со сверхпроводящим соленоидом, поддерживаемым при очень низкой температуре (температуре жидкого гелия).

### *Детекторы*

Последним по порядку, но не значимости для проведения масс-спектрометрического анализа, является процесс детектирования. Первые масс-спектрометры использовали в качестве детектора фотопластинку. Сейчас чаще всего используются электрические методы регистрации ионов. Методы электрической регистрации позволяют следить за изменениями тока во времени, тогда как фотографические методы позволяют измерять только интегральный эффект воздействия ионов. Чувствительность и постоянная времени являются определяющими параметрами детектирующих систем. Ионные токи стандартных масс спектрометров обычно составляют  $10^{-8}$ – $10^{-14}$  А. Для некоторых прецизионных измерений приходится измерять токи вплоть до  $10^{-19}$  А.

### *Электрометры*

Процесс детектирования ионов можно разбить на процесс собирания ионов, усиления сигналов и регистрацию спектра. Для получения пиков, высота которых пропорциональна числу пар ионов данной массы, щель коллектора должна быть несколько шире изображения щели источника нейтронов. Эта характеристика является чаще всего настраиваемой.



Рис. 4.7.10 Цилиндр Фарадея



Рис. 4.7.11 Электронный умножитель



Простой коллектор ионов состоит из цилиндров Фарадея, соединенных с высокоомным сопротивлением (см. рис. 4.7.10). Цилиндр Фарадея представляет металлический цилиндр, специально разработанный для захвата ионов в вакууме.

Ионный пучок входит в цилиндр аксиально через входную щель. Ионный ток измеряется по падению напряжения на сопротивлении. Сложные коллекторные системы состоят из нескольких щелей и колец с разными потенциалами для подавления вторичных электронов, метастабильных ионов и т.п. Полученный сигнал усиливается и записывается.

#### *Умножители*

Высокой чувствительности измерения или быстрой регистрации можно добиться, используя электронный умножитель (см. рис. 4.7.11). Умножители применяют либо в качестве предварительных усилителей к стандартным измерителям тока, либо в качестве усилителей импульсов в стандартной счетной аппаратуре, применяемой для измерения сцинтилляций. Используются два основных метода.

По первому методу ионы ускоряются потенциалом 2–5 кВ и направляются на первую пластину умножителя, который в данном случае действует как коллектор. С этого динода, называемого преобразующим, вылетают вторичные электроны, которые затем ускоряются и фокусируются на второй динод и так далее, как в обычном фотоэлектронном умножителе.

Во втором методе ионы, ускоренные потенциалом 10–20 кВ, выбивают вторичные электроны из динода преобразователя (алюминий). Эти электроны в дальнейшем ускоряются и попадают на сцинтиллятор, создающий поток фотонов, которые измеряются ФЭУ.

#### *Фотографическая регистрация масс-спектров*

Фотографический метод – один из основных в прошлом, сейчас утратил свое значение в связи с развитием электронных систем регистрации и обработки данных.

Фотографическая эмульсия – сложный приемник, одновременно являющийся преобразователем и регистратором. Бомбардировка пластины пучком заряженных частиц приводит к образованию скрытого изображения на зернах галогенидов серебра, диспергированных в желатине. Можно сказать, что проявитель выполняет роль химического усилителя. Окончательное негативное изображение состоит из восстановленных зерен серебра на месте скрытого изображения. Невосстановленные галогениды серебра удаляются в фиксирующий раствор.

#### **Основные характеристики масс-спектрометрических систем**

Наиболее важными техническими характеристиками масс-спектрометров являются разброс энергии, эффективность ионизации, типы получаемых ионов, чувствительность, динамический диапазон, разрешение, скорость.

#### *Разброс энергии*

Одним из важных параметров ионного источника является разброс энергии ионного пучка. Чем меньше разброс энергии, тем большую разрешающую способность можно достигнуть с данным анализатором. Разброс энергии обусловлен больцмановским распределением скоростей, которое определяет нижний предел, равный 0,1 эВ при температуре  $10^3$  К. Разброс энергии ионов источника с электронным ударом и термоионного источника приближаются к этому значению. Поэтому оба источника можно применять в сочетании с одинарной фокусирующей системой.

Высокочастотная искра требует применения энергетического фильтра (анализатора с двойной фокусировкой) вследствие большого разброса кинетической энергии ( $\sim 10^3$  эВ).

#### *Эффективность ионизации*

Эффективность ионизации, производимой источниками с электронным ударом, является однородной в пределах фактора 3 длф остаточных неорганических газов. Эффективность ионизации пропорциональна поперечному сечению ионизации для экспериментальных условий. Величина отношения числа ионов, входящих в анализатор, к числу нейтральных молекул, прошедших через ионизационную камеру, порядка  $1:10^5$ . Эффективность термоионного источника меняется по величине. Например, щелочные металлы, испаряющиеся с вольфрамовой проволоки ионизированы почти на 100%. Для других элементов этот показатель может быть ниже на порядки.

Эффективность получения положительных или отрицательных ионов в источнике с ионной бомбардировкой определяется теми же соображениями, что и для термоионного источника. Основное требование – низкий потенциал ионизации.

Общую эффективность разрядных источников ионов можно сравнить, рассматривая отношение числа потребляемых атомов к числу прошедших ионов. Расход пробы определяется весовыми измерениями, число ионов, достигающих коллектора, оценивается по выходу интегрального тока.

#### *Типы получаемых ионов*

Во всех источниках, за исключением разрядных, образуются преимущественно однозарядные одноатомные ионы. В высокочастотной искре наиболее интенсивные линии принадлежат однозарядным ионам. Интенсивность многозарядных ионов уменьшается в 3-10 раз на каждую степень ионизации. Ионный ток источников типа вакуумных вибраторов и горячей дуги постоянного тока в основном определяется двух- и трехзарядными положительными ионами.

#### *Скорость сканирования*

Масс-анализатор пропускает ионы с определенным соотношением массы и заряда в определенное время. Для того, чтобы проанализировать все ионы по отношению их массы к заряду, он должен сканировать, то есть параметры его поля должны за заданный промежуток времени пройти все значения, нужные для пропускания к детектору всех интересующих ионов. Эта скорость разворачивания поля называется скоростью сканирования и должна быть как можно больше (соответственно, время сканирования должно быть как можно меньше), поскольку масс-спектрометр должен успеть измерить сигнал за короткое время. Самыми медленными масс-анализаторами являются магнитные системы, минимальное время их сканирования без особой потери чувствительности составляет доли секунды. Любое сканирование является компромиссным – чем больше скорость сканирования, тем меньше времени тратится на запись сигнала на каждое массовое число, тем хуже чувствительность.

#### *Разрешение*

Наглядно разрешение (разрешающую способность) можно определить, как возможность анализатора разделять ионы с соседними массами. Очень важно иметь возможность точно определять массу ионов. Для магнитных масс-анализаторов, для которых расстояние между пиками масс-спектра не зависит от масс ионов, разрешение представляет собой величину равную  $M/\Delta M$ . Эта величина, как правило, определяется по 10 % высоте пика. Так, например, разрешение 1000 означает, что пики с массами 100,0 а.е.м. и 100,1 а.е.м. отделяются друг от друга, то есть не накладываются вплоть до 10 % высоты.

Для анализаторов, у которых расстояние между пиками меняется в рабочем диапазоне масс (чем больше масса, тем меньше расстояние), таких как квадрупольные анализаторы, ионные ловушки, времяпролетные анализаторы, строго говоря, разрешение имеет другой смысл. Разрешение, определяемое как  $M/\Delta M$ , в данном случае характеризует конкретную массу. Имеет смысл характеризовать эти масс-анализаторы по ширине пиков, величине, остающейся постоянной во всем диапазоне масс. Эта ширина пиков, обычно, измеряется на 50 % их высоты. Для таких приборов ширина пика на полувысоте, равная 1, является неплохим показателем и означает, что такой масс-анализатор способен различить номинальные массы, отличающиеся на атомную единицу массы практически во всем его рабочем диапазоне. Номинальной массой или массовым числом называют ближайшее к точной массе иона целое число в шкале атомных единиц массы. Например, масса иона водорода  $H^+$  равна 1,00787 а.е.м., а его массовое число равно 1. А такие масс-анализаторы, которые, в основном, измеряют номинальные массы, называют анализаторами низкого разрешения. Масс-спектрометры с двойной фокусировкой (магнитной и электростатической), ионно-циклотронного резонанса – приборы среднего или высокого разрешения. Типичным для магнитного прибора разрешением является  $>60,000$ , а работа на уровне разрешения 10,000 – 20,000 является рутинной. На масс-спектрометре ионно-циклотронного резонанса на массе около 500 а.е.м. можно легко достигнуть разрешения 500,000, что позволяет проводить измерения массы ионов с точностью до 4–5 знака после запятой. Разрешения в несколько тысяч также можно добиваться при использовании времяпролетных масс-анализаторов, однако, на высоких массах, в области

которых, собственно этот прибор имеет преимущество перед другими, и этого разрешения хватает лишь для того, чтобы измерить массу иона с точностью в несколько десятков а.е.м.

Разрешение тесно связано с другой важной характеристикой – точностью измерения массы. Проиллюстрировать значение этой характеристики можно на простом примере. Массы молекулярных ионов азота ( $N_2^+$ ) и монооксида углерода ( $CO^+$ ) составляют 28,00615 а.е.м. и 27,99491 а.е.м., соответственно (оба характеризуются одним массовым числом 28). Эти ионы будут регистрироваться масс-спектрометром порознь при разрешении 2500, а точное значение массы даст ответ – какой из газов регистрируется. Измерение точной массы доступно на приборах с двойной фокусировкой и на масс-спектрометрах ионно-циклотронного резонанса.

#### *Динамический диапазон*

Если анализируется смесь, содержащую 99,99 % одного соединения или какого-либо элемента и 0,01 % какой-либо примеси, то должна быть уверенность, прибор правильно анализирует обе составляющие смеси. Для того чтобы быть уверенным в определении компонентов в данном примере, нужно иметь диапазон линейности в 4 порядка. В современных масс-спектрометрах для элементного анализа эта величина составляет 9–12 порядков. Динамический диапазон в 10 порядков означает, что примесь в пробе будет видна даже тогда, когда она составляет 10 миллиграмм на 10 тонн.

#### *Чувствительность*

Это одна из важнейших характеристик масс-спектрометров. Чувствительность – это величина, показывающая какое количество вещества нужно ввести в масс-спектрометр для того, чтобы его можно было детектировать. Современные системы обладают поразительными характеристиками. Например, предел обнаружения неорганических веществ методом ICP/MS достигает 1 ppb (одна частица на  $10^9$ ), а для некоторых более сложных систем – 1 ppt (одна доля на квадриллион). Это значит, что чувствительности прибора достаточно, чтобы детектировать 1 килограмм металла (например, ртути, свинца и т.д.), растворенного в озере Байкал (при условии его перемешивания и полного растворения).

### **4.7.3 Анализ частиц**

В 1990-х годах в мире произошел ряд геополитических, технологических и других изменений, в результате которых возникла необходимость пересмотра методов обеспечения гарантий при использовании ядерных материалов и технологий. Как одно из отражений этих изменений, в мае 1997 года был принят Дополнительный договор с МАГАТЭ о гарантиях. Одним из новых инструментов гарантий, согласно Дополнительному протоколу, стал анализ проб не только на объектах ядерной энергетики, но также в большей степени – в окружающей среде.

Результатом принятия Дополнительного протокола стало усиление деятельности МАГАТЭ и стран международного сообщества, направленной на развитие высокочувствительных методов экспертизы ядерных объектов и их деятельности. Одним из результатов такой деятельности стало развитие специального направления анализов – анализ частиц.

Строго говоря, анализ частиц использовался и ранее, особенно СССР и США в период холодной войны, как инструмент сбора разведанных. Однако характер таких исследований и их направленность были иными. Тем не менее, в то время как и сейчас, анализ частиц остается одним из самых тонких и высокотехнологичных инструментов для определения характера ядерной деятельности, а также самым точным и надежным инструментом ядерных криминалистических расследований.

Реальная деятельность МАГАТЭ по отбору проб окружающей среды в целях обеспечения гарантий началась уже в 1996 году, как мера по подтверждению отсутствия несанкционированной деятельности с использованием ядерных материалов в странах, имеющих с Агентством соглашение о всеобъемлющих гарантиях. Анализ частиц, наряду с другими методами анализов, уже тогда был включен в необходимый перечень исследований.

Согласно Дополнительному протоколу обязательному анализу в плановом порядке стали подвергаться комплексы горячих камер, а также любые установки по обогащению топлива, его производству и переработке. Таким образом, резко возросла потребность в проведении аналитических исследований в области обеспечения гарантий. Такие исследования всегда

проводились с продуктами производства. Однако, кроме этого, возникла необходимость в разработке методов косвенных анализов, подтверждающих отсутствие скрытой несанкционированной деятельности по обогащению и выделению потенциально опасных ядерных материалов. Основным таким методом стал анализ частиц.

*Объект исследований*

Объектом исследований при анализе частиц может быть любой предмет, на поверхности или внутри которого может потенциально содержаться интересующая частица.



Рис. 4.7.12. Стандартный набор инспектора МАГАТЭ для мазковых проб

Штатным объектом исследований являются мазковые пробы. Мазковые пробы МАГАТЭ, как правило, собираются на специальный хлопковый материал. В случае горячих камер для снятия проб используется более грубый материал, изготовленный из целлюлозы. Стандартный набор инспектора для отбора мазковых проб состоит из: перчаток, пластиковых пакетов, хлопкового материала для снятия проб, контрольной пробы, специальных бланков для заполнения (см. рис. 4.7.12). Нередко исследованиям могут подвергаться как «мазковые пробы», так и перчатки, элементы одежды и обуви, а также обтирочная ветошь или даже элементы устройств и конструкций.

*Аналитический подход*

Как и любой другой метод исследований, анализ частиц состоит из ряда процедур, набор которых может различаться.

Суть метода состоит в поиске частицы или частиц ядерного материала практически любого доступного размера. При этом интересует не активность, а прежде всего изотопный состав частиц, который косвенно свидетельствует об истории ее возникновения или может стать указанием на наличие несанкционированной активности, направленной на приобретение ядерных материалов повышенной опасности с точки зрения вопросов обеспечения гарантий (высокообогащенного урана или плутония).

Если частиц много, или они велики по размерам, то для анализа пробы могут использоваться любые из традиционных методов анализа изотопного состава, описанные в разделе 4.5.3, а также методы низкофоновой радиометрии и альфа-спектрометрии. Для обнаружения присутствия актинидных элементов (в первую очередь урана и плутония), а также продуктов деления и активации (например,  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{106}\text{Ru}$  и других) образцы измеряются с помощью низкофоновой гамма-спектрометрии. Кроме того, образцы могут исследоваться с помощью рентгенфлуоресцентного метода для обнаружения присутствия в них U, Pu и других важных элементы. Альфа/бета радиометрия используется для выявления в образцах актинидов или бета-излучающих изотопов, таких как  $^3\text{H}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{99\text{m}}\text{Tc}$ .

В других случаях, если частицы не могут быть обнаружены и исследованы с помощью традиционных методов, проба подвергается специальным анализам, позволяющим найти и определить в ней характеристики микрочастиц. Такими методами обычно являются сканирующая электронная микроскопия и масс-спектрометрия.

Существует два принципиально разных подхода для анализа микрочастиц. Первый заключается в поиске самих микрочастиц на поверхности пробы или образца. После этого частицы с пробы «снимаются» и производится их отдельный анализ с помощью одного из

доступных и приемлемых по характеристикам методов масс-спектрометрии, позволяющих сделать высококачественный изотопный анализ. Вторым подходом предполагается обращение с образцом, как с единым целым («балк формой»). Образец целиком проходит обработку для последующего масс-спектрометрического анализа.

Первый подход является предпочтительным, так как в случае его применения, исключается возможность разбавления изотопного состава интересующей частицы другими частицами пробы. Такими «разбавителями» могут быть, например, частицы урана, источниками которой является внешняя среда.

В обоих случаях исследования микрочастиц проводятся в чистой лаборатории. Чистая лаборатория представляет собой помещения повышенного класса чистоты (обычно класс-100). Проход в лабораторию осуществляется через специальные шлюзы и при полном передевании, исключая возможность попадания в лабораторию микрочастиц извне. Помещения характеризуются также специальной системой вентиляции и жизнеобеспечения, позволяющей избежать возможных ошибок и просчетов по причине переноса микрочастиц из окружающей среды на исследуемый образец. Кроме того, планировка помещений предполагает минимальное пересечение маршрутов анализов для исследуемых образцов, а также наличие системы контроля за чистотой каждого используемого помещения с помощью методов анализа, аналогичных наиболее точным (обычно масс-спектрометрии).

#### *Методы и техника исследований*

Методы и техника, используемые для анализа частиц, могут различаться в разных лабораториях. В качестве примера для данного курса использовано описание методов и техники, используемых в лабораториях гарантий МАГАТЭ в Сейберсдорфе и Вене.

*Сканирующий электронный микроскоп (SEM).* Одним из важных элементов анализа, позволяющих найти и отделить интересующую микрочастицу от пробы, является электронный сканирующий микроскоп (см.рис. 4.7.13). Данный прибор предназначен для создания микрофокусированного электронного луча, который сканирует поверхность через вакуумный канал. Энергия электронов может составлять более 30 кэВ. Электронный луч обычно имеет диаметр 100 нм. Когда электронный пучок достигает поверхности исследуемого образца, в нем происходят несколько физических процессов:

- рассеяние луча в соответствии с топографией поверхности, которое может быть зарегистрировано и превращено в совершенные изображения поверхности пробы;
- упругое рассеяние луча на большие углы отклонения (близкие к  $180^\circ$ );
- стимулирование рентгеновского излучения атомов пробы, которое может дать карту размещения элементов на поверхности образца или элементарный состав пятен на поверхности (в режиме рентгеновского микроанализа).



Рис. 4.7.13. Рабочее место оператора установки растровой электронной микроскопии с возможностью рентгеноспектрального микроанализа

Регистрация рентгеновского излучения образца может быть выполнена с помощью твердотельного детектора рентгеновского излучения с широким диапазоном энергий (EDX детекторы) или с использованием спектрометра, который рассеивает рентгеновское излучение в

соответствии с его длиной волны (дифрактометра) и может измерять ее длину (энергию) во времени (WDX детекторы).

Автоматический поиск частиц может быть организован с помощью микроскопа, имеющего специальное программное обеспечение. Например, в Сейберсдорфской лаборатории, программно может быть задан поиск частиц урана на поверхности образца размерами в несколько мм<sup>2</sup> с использованием обратного рассеяния от тяжелых частиц. Затем система EDX определяет рентгеновский спектр от каждой из найденных частиц. В результате получается база данных, содержащий тысячи частиц. База данных может быть сортирована для нахождения частиц с наибольшим содержанием урана, или в зависимости от других параметров, настраиваемых исследователем (например, наличие фтора). После предварительной обработки информации оператор может выбрать частицу, которую он желает исследовать более детально с помощью WDX детектора, который является более точным для определения элементного состава.

Элементный анализ с помощью WDX систем особенно полезен для определения возраста плутониевых материалов, собираемых на мазки внутри горячих камер. Частицы, содержащие в основном плутоний, могут также содержать небольшое количество урана (от исходного топлива), а также америций, образующийся при распаде <sup>241</sup>Pu. Техника совместного использования сканирующей электронной микроскопии и рентгенфлуоресцентного анализа (SEM/XRF) позволяет измерять содержание урана и америция в плутонии вплоть до 0,1 %. Измерение уран-плутониевого отношения помогает установить факт проведения выделения плутония из отработанного топлива.

В зависимости от необходимости и возможностей существует два основных метода приготовления проб для анализа SEM/XRF согласно инструкциям МАГАТЭ:

- использование углеродного диска, прикрепленного к гониометрическому столику сканирующего микроскопа. Поверхность диска покрыта специальным клейким веществом, которое позволяет переносить частицы на диск простым прикосновением к нему материала с пробой. В качестве клеящего материала также может быть использована двухсторонняя клейкая углеродная лента, которая одной стороной крепится к столику микроскопа, а на вторую помещаются микрочастицы. Данный метод, как правило, используется для проб из горячих камер, которые меньше чем хлопковые;
- для хлопковых проб, больших в диаметре, высокая репрезентативность достигается следующим образом. Хлопковый материал нарезается на кусочки размером 1 см<sup>2</sup> и помещается в стеклянную колбу с органическим раствором, например, гептаном. Далее колба отправляется в ультразвуковую ванну для того, чтобы освободить частицы от мусора и сконцентрировать их в растворе. В заключении проводится еще одна обработка органическим раствором и центрифугирование для концентрации частиц в окончательном растворе, который в дальнейшем наносится на столик микроскопа при помощи пипетки. Когда поверхность столика высохнет, проба готова к анализу.

*Типичные результаты анализов с помощью микроскопа.* МАГАТЭ, совместно с Лабораторией анализа микрочастиц в Москве, создан атлас урановых частиц различного происхождения (см. рис. 4.7.14, 4.7.15). Источником частиц для атласа являлись пробы окружающей среды, отобранные вблизи урановых рудников, предприятий по обогащению урана с помощью центрифужного метода, предприятий по производству топлива и из горячих камер. Атлас содержит фотомикрограммы «типичных» частиц, их размеры и описание морфологии, а также информацию об их элементном составе, полученную на основе метода EDX. Такая информация является полезной для непосредственной идентификации морфологии частицы, вплоть до определения формы их кластеров. Морфология и содержание фтора особенно полезны при определении «возраста» частиц, подвергшихся гидролизу или воздействию влажного воздуха, при обращении с газообразным UF<sub>6</sub>. Это позволяет разделить частицы, связанные с прошлой и недавней деятельностью предприятия.

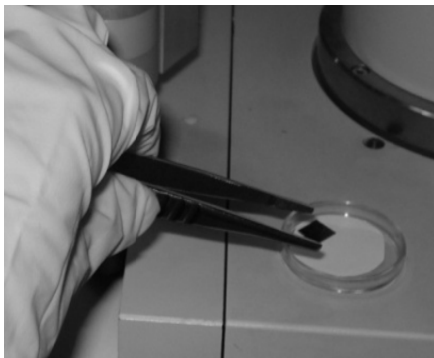


Рис. 4.7.14. Кремниевая подложка для исследований в растровом электронном микроскопе

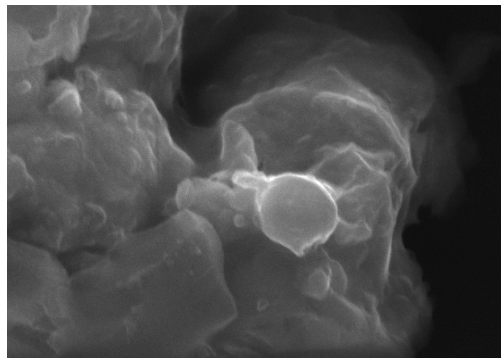


Рис. 4.7.15. Микрофотография урансодержащей частицы

Другой современной областью применения автоматического поиска частиц с помощью сканирующей электронной микроскопии является изучение образцов почвы в местах использования боеприпасов, содержащих обедненный уран. Пробы состоят из почвы, которая была просушена, просеяна для сбора частиц размером менее 45 микрон в диаметре и затем нанесена на липкий графитовый диск для исследований с помощью SEM. Поиск частиц выполнялся в режиме обратного рассеяния электронов с проведением EDX анализа всех обнаруженных тяжелых частиц. Таким образом, удалось обнаружить и исследовать тысячи урановых частиц в двух подготовленных пробах. Элементный анализ показал наличие в частицах титана с добавкой урана около 1%. Такой результат свидетельствует об использовании боеприпасов высокой проникающей способности с использованием обедненного урана.

Изучение образцов плутониевых частиц из горячих камер может являться источником информации о характере проводящихся в ней работ. В особенности, при обращении с облученным топливом реактора проба будет содержать частицы, в которых отношение U/Pu велико ( $U/Pu=100-1000$  в зависимости от условий облучения). Частицы с содержанием Pu большим, чем в указанном диапазоне, могут свидетельствовать о деятельности, связанной с его химическим выделением. Кроме того, содержание в частицах америция (по отношению к плутонию) является индикатором возраста материала. Для таких анализов наряду с электронной микроскопией обычно используется рентгенфлуоресцентный анализ высокого разрешения (WDX). Содержание плутония в первичном уране может быть обнаружено на уровне 0,2%, в то время как содержание америция и урана в плутониевых частицах может быть обнаружено на уровне 0,1%.

*Использование ионного масс-спектрометра.* Современная система вторичной ионной масс-спектрометрии (SIMS), используемая в Сейберсдорфской лаборатории гарантий, может использоваться в двух режимах. Эта система может создавать образы (картинки) исследуемого образца с помощью вторичных ионов заданной массы, выбиваемых с его поверхности пробы. Таким образом, для создания образа частицы урана может использоваться тяжелый ион  $^{238}U^+$ . Это так называемый режим «ионного микроскопа». Сохраняя изображения, полученные для  $^{238}U^+$  и  $^{235}U^+$ , становится возможным определить обогащение частиц в пробе. Второй режим использования прибора подразумевает выполнение обычного масс-спектрометрического анализа найденной частицы. Он носит название «ионной микропробы» и обеспечивает количественное измерение изотопного содержания основных изотопов, а также минорных – например,  $^{234}U$  и  $^{236}U$ . Однако такие измерения обычно занимают гораздо больше времени, чем в режиме «ионного микроскопа». Методы подготовки проб, описанные для сканирующей электронной микроскопии, являются пригодными и в отношении вторичной ионной масс-спектрометрии. Однако пробы, содержащие очень малое число частиц, требуют более интенсивной подготовки, включая многократную микроволновую обработку или озоление мазка. Это может создать свои проблемы, связанные с большим объемом золы от ткани мазковой пробы. Кроме того, необходимо всегда поддерживать строгий баланс между

частицами, имеющими интерес и теми из них, которые мешают анализу, благодаря электростатическому эффекту.

В целом, описанный масс-спектрометр позволяет определять наличие частиц урана или другого тяжелого элемента с помощью режима «ионного микроскопа». При этом высокообогащенный уран, может быть отделен с помощью этого режима от низкообогащенного. После обнаружения для частиц может быть выполнен высокоточный изотопный анализ с чувствительностью порядка фемтограмм ( $10^{-15}$  г). Таким образом, метод масс-спектрометрии является необходимым дополнением к сканирующей электронной микроскопии, которая не может обеспечить изотопного анализа частиц, необходимого для целей гарантий.

*Подготовка и анализ «балк» образцов.* «Балк» анализы мазков окружающей среды относятся к методам, предполагающим разрушение исследуемого, включая материал мазка (матрицу), с последующим выделением и очисткой плутония и урана для масс-спектрометрического анализа.

Для проведения процессов отделения, очистки урана и плутония образец должен быть растворен, а на его основе приготовлен гомогенизированный водный раствор. Разрушение органической матрицы пробы (ткани) выполняется путем ее оксидации с использованием высокотемпературного озоления или методами мокрой химии. Использование микроволнового излучения способствует проведению процессов мокрого химического растворения пробы, а также ее озоления с помощью холодной плазмы. Однако такие методы не являются обычными в процессе пробоподготовки.

После озоления и растворения остатков в азотной кислоте образец делится на две части. Одна часть используется для определения концентрации урана и плутония методом масс-спектрометрии с добавлением известного количества изотопа в смесь. В качестве добавляемого изотопа используются изотопы тех же элементов, что находятся в пробе. Однако добавляемые изотопы обычно в исследуемом образце отсутствуют. Известного количества изотопа в смеси используется в качестве внутреннего стандарта и позволяет повысить качество анализов. В качестве добавляемых изотопов часто используют  $^{233}\text{U}$  в количества порядка нанограмма и несколько сот пикограмм  $^{244}\text{Pu}$ . Вторая часть пробы используется для проведения высокоточного масс-спектрометрического изотопного анализа с помощью TIMS спектрометра.

Для выполнения основной химической процедуры разделения урана и плутония требуется, чтобы степень их окисления в растворе равнялась четырем. Поэтому иногда раствор должен пройти дополнительную подготовку с целью снижения окисления в нем элементов (плутония в частности). Установление определенной степени окисления определяемых элементов также имеет большую важность для правильного использования внутреннего стандарта, так как обеспечивает определенное соотношение в растворе между определяемым и искусственно внесенным изотопами. Последующее отделение плутония и урана от матрицы пробы может выполняться с помощью метода экстракции твердой фазы (SPE) или ионного обмена.

Для метода экстракции твердой фазы в качестве селективного экстрагента урана и плутония используется три-н-оксилофосфорный оксид (ТОРО). Процедура использования ионообменной смолы для отделения урана и плутония основана на стабильности соответствующих урановых и плутониевых анионных комплексов, которые образуются из растворов азотной и соляной кислоты. Метод ионного обмена, в частности, позволяет добиться при масс-спектрометрическом анализе чувствительности в диапазоне от нанограмм до пикограмм.

Таким образом, анализ «балк» образцов мазковых проб окружающей среды предоставляет уникальные возможности для определения урана и плутония в ультраследовых количествах. Одновременно с этим выполняется высокоточный изотопный анализ проб. Ограничение метода связано с его использованием для исследования проб обогатительного производства и, в некоторых случаях, горячих камер, где может присутствовать смесь старых и новых частиц разного обогащения и происхождения.



## NS4.8 КОЛИЧЕСТВЕННЫЕ ИЗМЕРЕНИЯ ЯДЕРНЫХ МАТЕРИАЛОВ

Помимо описанных в различных разделах курса методов определения количества и изотопного состава ядерных и радиоактивных материалов, существует целый ряд других, имеющих более узкую направленность применения. Описание их всех не может быть сделано в рамках данного курса. Поэтому, в качестве дополнения к уже имеющемуся материалу, в разделе 4.8 рассматриваются основы еще трех методик определения количества ядерных материалов: использование систем регистрации нейтронных совпадений; калориметрия; плотнометрия. Необходимость изучения основ этих методик определяется задачами курса, а также областью их применения, которая охватывает широкий спектр используемых в ядерном топливном цикле материалов.

Для написания раздела в высокой степени использованы материалы одного из лучших современных руководств по пассивному неразрушающему анализу ядерных материалов – книга Дугласа Райлли, Норберта Энслина, Хейчтинга Смита и мл. Технического редактора – Сары Лрайнер “Passive Nondestructive Assay of Nuclear Materials”. Эта книга активно использовалась также для подготовки других разделов курса и рекомендуется в качестве одного из ключевых методических пособий.

### 4.8.1 Регистрация нейтронных совпадений

Определение содержания урана и плутония в объемных образцах металла, оксидов, смешанного уран-плутониевого оксидного топлива, ТВЭЛ, ТВС и других объектах часто может проводиться без разрушения образца с помощью регистрации нейтронных совпадений. Эта 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 нейтронов фона в том помещении, где проводятся измерения, и нейтронов  $(\alpha, n)$ -реакций, так как эти нейтроны являются некоррелированными или случайными во времени.

Для урана значения выхода нейтронов невелики, однако образцы, содержащие килограммовые количества  $U^{238}$ , имеют 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  $(\alpha, n)$ -реакций. Тогда, если изотопный состав материала известен, может быть рассчитано полное содержание урана и плутония.

Для плутониевого образца, содержащего  $Pu^{238}$ ,  $Pu^{240}$ , и  $Pu^{242}$ , наблюдаемый отклик нейтронных совпадений будет обусловлен всеми тремя изотопами. Однако вклад  $Pu^{240}$  обычно является доминирующим как в плутонии низкого выгорания, содержащем  $\sim 6\% Pu^{240}$ , так и в реакторном плутонии высокого выгорания, содержащем от 15% до 20%  $Pu^{240}$ . В связи с этим при регистрации нейтронных совпадений вводится понятие эффективной массы  $Pu^{240}$ :

$${}^{240}Pu_{эфф} = 2,52Pu^{238} + {}^{240}Pu + 1,68{}^{242}Pu, \quad (4.8.1)$$

где  ${}^{240}Pu_{эфф}$  – это такое значение массы  ${}^{240}Pu$ , которое вызывает точно такой же отклик нейтронных совпадений, который был бы получен от всех четных изотопов в реальном образце. Обычно содержание  ${}^{240}Pu_{эфф}$  превышает действительное содержание  ${}^{240}Pu$  на величину от 2% до 20%. Коэффициенты 1,68 и 2,52 в уравнении определяются следующими факторами: а) соотношениями периодов полураспада спонтанного деления каждого изотопа; б) соотношениями распределений множественности нейтронов спонтанного деления каждого изотопа; в) способом получения этих значений множественности с помощью схем анализа совпадений. Значения относительных выходов нейтронов спонтанного деления играют определяющую роль. Коэффициенты, приведенные выше, справедливы для схемы анализа

совпадений типа сдвигового регистра, и их значения для других схем изменяются совсем незначительно.

Наиболее распространенным способом измерения нейтронных совпадений является пассивный метод регистрации нейтронов спонтанного деления. Однако, поскольку деления могут быть вынужденными, в частности, для таких изотопов как  $^{239}\text{Pu}$  и  $^{235}\text{U}$ , 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  $(\alpha, n)$  - нейтронов, схема анализа совпадений может выделить коррелированные нейтроны деления на фоне некоррелированных нейтронов источника.

### Особенности метода

Хотя метод нейтронных совпадений практически является незаменимым инструментом для неразрушающего определения больших количеств урана и плутония («балк формы»), однако у него есть ряд ограничений, обусловленный спецификой процесса детектирования излучения, используемых электронных схем регистрации, а также методического подхода к анализу результатов измерений.

Специфика процесса детектирования определяется типами детектируемого излучения и, как следствие, используемых детекторов. Привлекательность метода обусловлена хорошей проникающей способностью быстрых нейтронов (что позволяет измерять большие объемы ядерного материала), а также уникальным соответствием связанных во времени нейтронов процессу деления (составу исследуемого образца). С другой стороны, для разработки эффективной системы регистрации нейтронов, необходимо обратить внимание на тип нейтронного детектора, а также на материалы замедлителя и защиты.

Основная задача системы – эффективная регистрация нейтронов совпадения, не связана непосредственно со спектральным анализом, и поэтому изотопный состав исследуемого образца ядерного материала должен быть заранее известен или изучен с помощью других методов. Данные об изотопном составе используются в системах совпадений в качестве необходимой исходной информации.

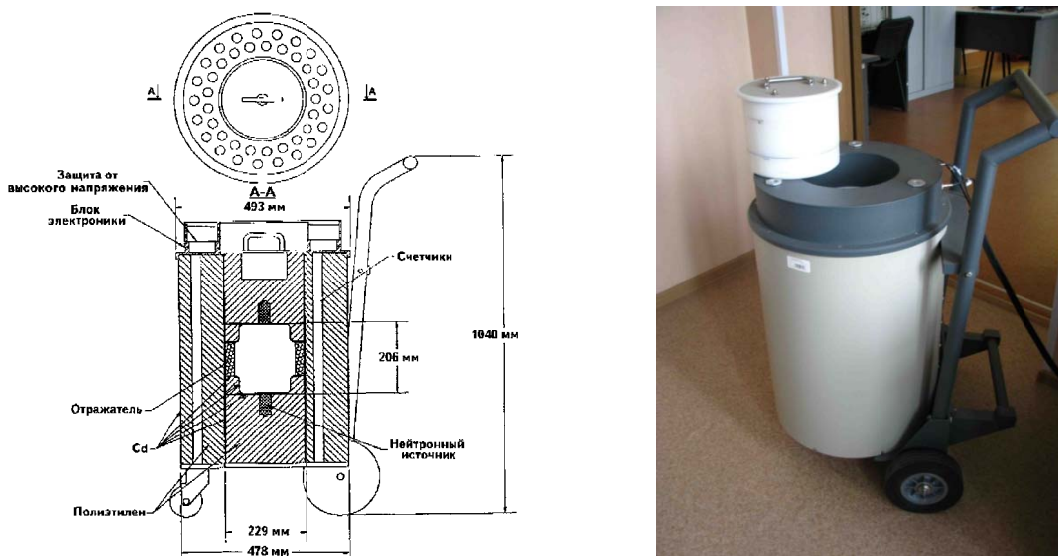


Рис. 4.8.1. Схема и внешний вид блока детектирования активного счетчика нейтронных совпадений

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, 4 $\pi$ -геометрия или колодезный детектор), а также использованием эффективных детекторов тепловых нейтронов (см. рисунок 4.8.1).

В настоящее время, большинство установок нейтронных совпадений используют газоразрядные счетчики нейтронов на основе  $^3\text{He}$ , ввиду их высокой эффективности, надежности, стойкости и низкой чувствительности к гамма-фону. Счетчики, наполненные  $\text{BF}_3$ , также иногда используются для уменьшения стоимости или для работы в сильных гамма-полях, однако их эффективность почти в два раза ниже, чем у  $^3\text{He}$ -счетчиков. Основным недостатком применения счетчиков с наполнением  $^3\text{He}$  и  $\text{BF}_3$  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  $t$  в детекторе. Как результат, ширина ворот совпадений  $G$  в электронной схеме (см. далее по тексту раздела) должна иметь достаточно большую величину (от 10 до 100 мкс), чтобы зарегистрировать совпадения связанных во времени нейтронов. В итоге большая ширина ворот приводит к увеличению статистической погрешности при высоких скоростях счета.

Для оптимизации конструкции детекторов нейтронных совпадений на основе  $^3\text{He}$ -счетчиков было использовано компьютерное моделирование переноса нейтронов с применением методов Монте-Карло. При проектировании принимались 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.

В некоторых системах регистрации нейтронных совпадений используются 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  $^4\text{He}$ . К сожалению, сцинтилляторы чувствительны к фону гамма-излучения, а детекторы на основе  $^4\text{He}$  относительно низко эффективны. Поэтому их использование ограничено, в основном, специальными случаями.

Методический подход к анализу результатов измерений, используемый для определения массы ядерных материалов методом нейтронных совпадений, не является исключительным и по своей сути соответствует методам сравнительных анализов, используемых в радиометрии и спектрометрии (см. разделы 4.4, 4.5 курса). Количество нейтронов совпадений однозначно связывается с массой ядерного материала в исследуемом образце с помощью калибровочной кривой, которая строится по результатам измерений образцовых материалов, обладающих полной или почти полной идентичностью с исследуемыми образцами по форме, изотопному составу и составу поглощающих материалов. Масса калибровочных образцов должна быть близка к массе исследуемых. Тем не менее, даже при наличии всех необходимых атрибутов у калибровочных образцов, точность анализов обычно не превышает десятых долей процента, а чаще составляет единицы процентов. Возникновение случайных и систематических погрешностей определяется высоким уровнем самопоглощения нейтронов в ядерных материалах, существенным влиянием положения образца на результаты анализов, а также совокупностью других эффектов (влажность, саморазмножение, мертвое время), многие из которых связаны с особенностями электронной аппаратуры.

Так как особенности метода анализа результатов измерений не представляют особого интереса, а изучение различных по конструкции и характеристикам активных и пассивных систем нейтронных совпадений объемно и не может быть включено в рамки курса, то данный разделе посвящен, в основном, описанию основ принципов регистрации нейтронов совпадения. Основные принципы играют ключевую роль в понимании сущности метода и раскрывают его особенности.

### *Характеристики последовательности нейтронных импульсов*

Для понимания механизма регистрации совпадений рассматривается 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,  $(\alpha, n)$ -реакциями и внешним фоном. При делении обычно образуется несколько нейтронов, которые коррелированы или совпадают во времени, в то время как нейтроны  $(\alpha, n)$ -реакции и внешнего фона случайно распределены во времени или некоррелированы.

#### *Идеальные и действительные последовательности импульсов*

Пример идеальной последовательности импульсов, содержащей коррелированные и некоррелированные события, показан на рис. 4.8.2а. Действительная последовательность импульсов, регистрируемая с помощью обычного счетчика совпадений, будет более сложной, как показано на рис. 4.8.2б. Это происходит потому, что конструкция счетчика нейтронных совпадений оказывает влияние на последовательность импульсов.

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. 4.8.2б. Для того, чтобы визуально выделить и количественно определить числа действительных и случайных событий, полезно использовать либо распределение интервалов, либо распределение Росси-альфа.

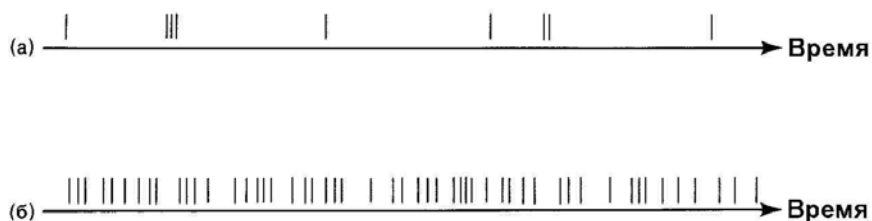


Рис. 4.8.2. Последовательность нейтронных импульсов на временной оси  
(а) Идеализированная последовательность импульсов, содержащая коррелированные и некоррелированные события.  
(б) Действительная последовательность импульсов.

#### *Распределение интервалов*

Распределение интервалов является распределением интервалов времени между зарегистрированными событиями. Формула для него имеет следующий вид:

$$I(t) = \exp\left[-\int_0^t Q(t) dt\right], \quad (4.8.2)$$

где  $I(t)$  – вероятность регистрации интервалов времени длительностью  $t$ ;

$Q(t)$  - вероятность регистрации второго события как функции 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 будет иметь следующий вид:

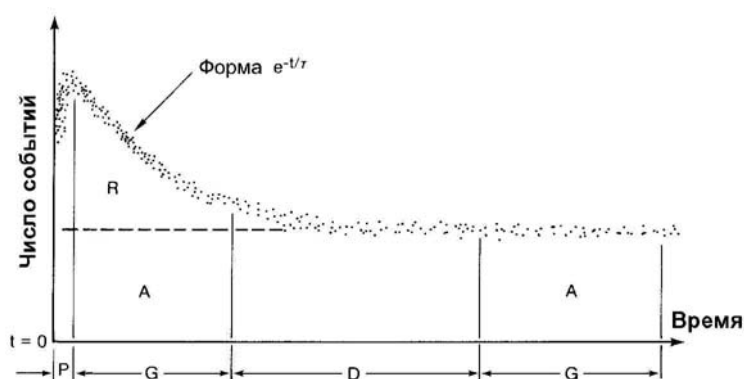
$$I(t) = T \cdot e^{-Tt}. \quad (4.8.3)$$

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.

#### Распределение Росси-альфа

Распределение Росси-альфа может быть получено при запуске таймера в момент прихода какого-либо импульса. Таймер отсчитывает время, а каждый последующий импульс запоминается в ячейке, соответствующей времени его прихода. Когда заданное время отсчетов заканчивается, таймер останавливается и включается снова, когда новый импульс запустит процесс счета. Пример распределения Росси-альфа представлен на рис. 4.8.3. Вероятность счета совпадений после акта деления уменьшается со временем экспоненциально. Если совпадают нейтроны ( $\alpha, n$ )-реакций или фоновые нейтроны, то вероятность таких случайных совпадений в любом временном интервале одинаковая.



$A$  – число случайных совпадений;  
 $P$  – время предварительной задержки счета импульсов;  
 $G$  – время счета совпадений;  
 $D$  – длительная задержка;  
 $\tau$  – время жизни нейтрона в детекторе.

Рис. 4.8.3. Распределение Росси-альфа представляет число случаев детектирования нейтронов как функцию времени, прошедшего после регистрации первого нейтрона деления

#### Основные особенности схем совпадения

##### 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.

##### Продлеваемое и непродлеваемое мертвое время

На рис. 4.8.4а представлена иллюстрация непродлеваемого (или непарализуемого) 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 4.8.2, можно показать, что для чисто случайной входной скорости счета  $T$ , выходная скорость счета  $T_m$  будет определяться следующей формулой:

$$T_m = \frac{T}{1 + G \cdot T} \quad (4.8.4)$$

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 рисунке 4.8.4б. 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. Для случайных событий справедливо следующее уравнение:

$$T_m = T \cdot e^{-GT}. \quad (4.8.5)$$

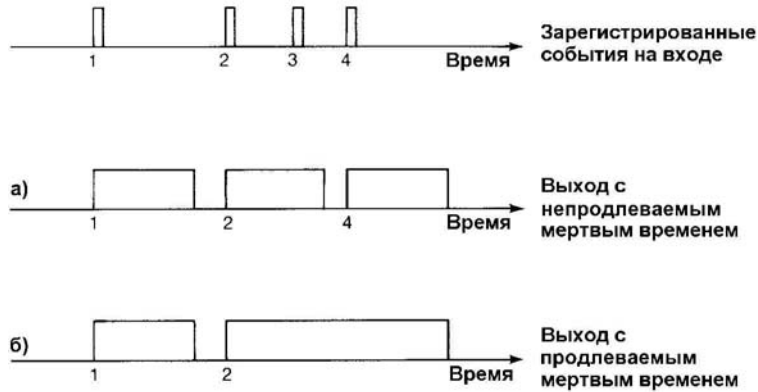


Рис. 4.8.4. Два генератора ворот с различным типом мертвого времени электроники а) Непродлеваемое мертвое время. б) Продлеваемое мертвое время.

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 4.8.4 и 4.8.5 дают идентичные поправки на мертвое время.

*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. Схема простого взаимокорреляционного способа измерения показана на рис. 4.8.5а. 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.

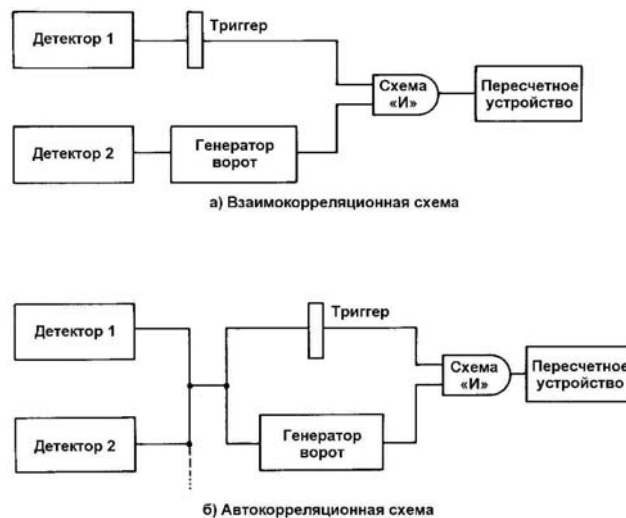


Рис. 4.8.5. Два типа схем совпадений: а) взаимокорреляционная схема; б) автокорреляционная схема.

На рис. 4.8.5б 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.

Автокорреляционные схемы являются наиболее важными схемами для регистрации нейтронных совпадений.

### **Три основные схемы регистрации совпадений**

#### *Схема с переменным мертвым временем*

Схема с переменным мертвым временем или VDC была разработана в Европе для анализа плутониевых отходов. Эта схема является достаточно простой (рис. 4.8.6), 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.



Рис. 4.8.5. Схема с переменным мертвым временем

#### *Схема одновибратора с продлеваемым мертвым временем*

Схема одновибратора с продлеваемым мертвым временем показана на рис. 4.8.7. Первая половина этой схемы генерирует сигнал мгновенных совпадений 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  $\tau$  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.

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:

$$R = \frac{(R_{\text{пересчет.устр.}} - A_{\text{пересчет.устр.}}) - A}{(1 - e^{-(D+G)/\tau})(1 - e^{-G/\tau})e^{-P/\tau}} e^{GT}. \quad (4.8.6)$$



Рис. 4.8.7. Схема совпадений с продлеваемым мертвым временем на двух одновибраторах равной длительности

Экспонента в числителе 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, но их применение также ограничивалось низкими скоростями счета.

#### 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). Схема логики уменьшенной дисперсии RVL использует этот метод для анализа ядерных материалов.

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  $\bar{C}$  и второй  $\bar{C}^2$  моменты распределения импульсов. Отношение дисперсии к среднему значению дается выражением:

$$\frac{\bar{C}^2 - \bar{C}^2}{\bar{C}}. \quad (4.8.7)$$

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:

$$Y = \frac{\bar{C}^2 - \bar{C}^2}{\bar{C}} - 1, \quad (4.8.8)$$

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:

$$Q = \bar{C}^2 - \bar{C}^2 - \bar{C}. \quad (4.8.9)$$

Величина  $Q$  не зависит от случайного некоррелированного фона и пропорциональна только скорости счета действительных совпадений  $R$ .



### *Схема анализа совпадений на основе сдвигового регистра. Принцип построения схемы счета нейтронных совпадений*

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.

Регистрация совпадений не начинается сразу, а лишь через короткий интервал после прихода импульса  $P$  (предварительная задержка). В течение этого времени (3–6 мкс) из-за наложения импульсов и мертвого времени электроники искажается скорость счета источника совпадений (и распределение Росси-альфа). После предварительной задержки сдвиговый регистр открывает  $R + A$  ворота, ширина которых составляет обычно 32–64 мкс. В это время регистрируются истинные и случайные совпадения. Затем, после длительной задержки  $D$ , открываются ворота  $A$ . Поскольку величина  $D$  обычно равна 1000 мкс, что много больше времени жизни нейтронов в детекторе (30–100 мкс), пересчетное устройство  $A$  регистрирует только случайные совпадения. Упрощенная схема сдвигового регистра дана на рис. 4.8.8.

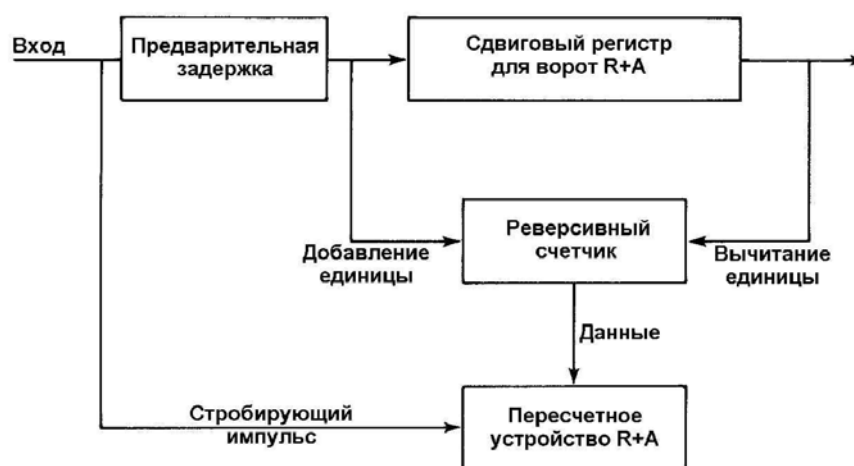


Рис. 4.8.8. Упрощенная схема сдвигового регистра

Первый импульс с  $^3\text{He}$ -счетчиков приходит на устройство предзадержки. Спустя время  $t_z$ , вырабатывается сигнал для запуска реверсивного счетчика. Одновременно входной импульс освобождает  $R + A$ - счетчик. При поступлении второго импульса в реверсивный счетчик добавляется 1, и то же число записывается в  $R + A$ - счетчик.

Если интервал времени  $G$  еще не закончился, то может пройти третий импульс, который добавит в реверсивный счетчик еще 1 и в нем накопится два отсчета. Одновременно к

содержимому  $R + A$ - счетчика прибавляется число 2 из реверсивного счетчика, и в нем после прихода третьего импульса фиксируется число  $1 + 2 = 3$ .

Если ворота  $G$  еще открыты и приходит четвертый импульс, то в реверсивном счетчике накапливается 3 отсчета, а в  $R + A$ - счетчик после строба добавляется число 3, и в нем теперь содержится число  $1 + 2 + 3 = 6$ . Процесс подсчета длится, пока не закончится интервал времени  $G$ . В момент его завершения схема управления выдает сигнал длительной задержки, после которой начинается подсчет случайных совпадений в интервале времени  $G$ .

По окончании подсчета событий в счетчике  $A$  результаты запоминаются, и схема ожидает прихода нового стартового импульса.

Всего при делении испускается  $\nu$  нейтронов, для которых число возможных совпадений равно  $\nu(\nu-1)/2$ . При спонтанном делении  $^{240}\text{Pu}$  число  $\nu$  может изменяться от 0 до 6. В таблице 4.8.1 приведены возможные комбинации совпадений и показаний сдвигового регистра.

Таблица 4.8.1. Число возможных совпадений для разного числа испускаемых при делении нейтронов

№ п/п	Число нейтронов, образовавшихся в акте деления	Число возможных совпадений	Показания сдвигового регистра
1	0	0	0
2	1	0	0
3	2	1	1
4	3	3	3
5	4	6	6
6	5	10	10
7	6	15	15

Таким образом, показания сдвигового регистра соответствуют числу регистрируемых совпадений. Число истинных двойных совпадений определяется по формуле:

$$R = \frac{(R - A)_{\text{пересчет.устр.}} - A_{\text{пересчет.устр.}}}{(1 - e^{-(D+G)/\tau})(1 - e^{-G/\tau})e^{-P/\tau}} \quad (4.8.10)$$

Уравнение 4.8.10 идентично уравнению 4.8.6 за исключением того, что для сдвигового регистра не требуется большая экспоненциальная поправка на мертвое время. Составляющая  $(1 - e^{-(D+G)/\tau})$  должна быть близка к единице, если задержка  $D$  много больше, чем время затухания  $\tau$  в детекторе. Следовательно, этот множитель можно не учитывать.

В уравнении 4.8.10 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  $R = (R - A)_{\text{пересчет.устр.}} - A_{\text{пересчет.устр.}}$  можно рассматривать как наблюдаемый отклик нейтронных совпадений.

Уравнение, которое связывает величину  $R$  с физическими характеристиками образца плутония, детектора и схемы совпадений, имеет следующий вид:

$$R = m_{240} (473 \text{ делений} / c \cdot \varepsilon) \varepsilon^2 e^{-P/\tau} (1 - e^{-G/\tau}) \sum_{\nu} P(\nu) \frac{\nu/(\nu-1)}{2!}, \quad (4.8.11)$$

где:  $R$  – истинная скорость счета совпадений;

$m_{240}$  – эффективная масса  $^{240}\text{Pu}_{\text{эфф}}$  образца;

$\varepsilon$  – полная эффективность детектора;

$\nu$  – множественность нейтронов спонтанного деления;

$P(\nu)$  – распределение вероятности множественности;

$P$  – предварительная задержка;  
 $G$  – ширина ворот совпадений;  
 $\tau$  – время затухания отклика в детекторе.

Согласно уравнению 8.4.11, отклик схемы сдвигового регистра для  $n$  событий, близких по времени друг к другу, пропорционален  $\nu(\nu - 1)/2$ , в то время как отклик традиционной схемы был бы пропорционален  $(\nu - 1)$ . Для реальных значений величин  $\varepsilon$  и  $\nu$  разности не велики и автоматически рассчитываются при проведении градуировки.

Уравнение 8.4.11 предоставляет возможность определения времени затухания отклика  $\tau$  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  $\tau$  справедливо следующее соотношение:

$$\tau = -G_1 / \ln(R_1 / R_2 - 1). \quad (4.8.12)$$

#### 4.8.2 Калориметрия ядерных материалов

Калориметрия – это количественное измерение теплоты. Она измеряет передачу энергии от одной системы к другой, вызываемую разностью температур. Применение калориметрии включает 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 данном разделе, в качестве примера, рассматривается калориметрический анализ плутония, хотя основные принципы измерений применимы к любым измерениям ядерных и радиоактивных материалов. Важные отличительные особенности и преимущества калориметрического анализа заключаются в следующем:

- может быть проведено измерение для всего образца;
- анализ не зависит от геометрии образца (она оказывает влияние только на время достижения равновесного состояния);
- анализ не зависит от состава материала матрицы и распределения материала, включая номинальное содержание влаги;
- анализ не зависит от распределения ядерного материала в образце, включая эффекты самоослабления в образце;
- измерения электрического тока и разности потенциалов осуществляются непосредственно с использованием эталонных материалов;
- калориметрический анализ позволяет в большинстве случаев различать между собой образцы урана и плутония (энерговыведение изотопов плутония намного больше и обычно именно они используются для анализа);
- 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;
- калориметрический анализ по точности сравним с химическим анализом, если хорошо известен изотопный состав измеряемого материала.

Современный калориметрический анализ ядерных материалов 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 (пример устройства см. рис. 4.8.9). Этот метод более точен, но менее оперативен или в меньшей степени компактен, чем другие методы неразрушающего анализа, описанные ранее в курсе. Он часто обеспечивает точные эталонные

измерения для улучшения градуировки других методов анализа, таких, например, как метод регистрации нейтральных совпадений.



Рис. 4.8.9. Внешний вид 18-ти дюймового дифференциального калориметра широкого спектра применения

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 данном разделе в основном рассматриваются принципы проведения калориметрических измерений, типы калориметров и методы работы с ними. Описание существующих калориметрических систем может быть найдено в специальной литературе, рекомендованной в конце курса.

#### **Выделение тепла 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,  $^{239}\text{Pu}$  распадается по схеме  $^{239}\text{Pu} \rightarrow ^{235}\text{U} + \alpha$  - частица + 5,15 МэВ.

Радиометрические калориметры работают на 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.

Калориметрический анализ представляет собой процесс измерения калориметром скорости нагрева материала при радиоактивном распаде и определения аналитического коэффициента связи тепловой мощности и массы.

#### *Энерговыделение при $\alpha$ - распаде*

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  $\alpha$  - частиц в большинстве материалов не превышает нескольких микрометров, поэтому вся энергия  $\alpha$  - распада эффективно передается в тепло.

#### *Энерговыделение при $\beta$ - распаде*

В случае  $\beta$  - распада или захвата электронов определение потерь энергии в материале является намного более сложным, чем при  $\alpha$  - распаде. Одновременно с образованием и поглощением в среде  $\beta$  - частиц, происходит ряд конкурирующих процессов: ионизация, образование тормозного излучения, образование нейтрино (которое уносит часть энергии безвозвратно) и эмиссия электронов конверсии. Энергия, потерянная непосредственно в поглотителе в виде тепла, составляет в среднем одну треть максимальной энергии  $\beta$  - распада определенного радиоизотопа. Остальная часть энергии не участвует в образовании теплоты.

#### *Энерговыделение, связанное с образованием $\gamma$ - квантов*

Распад радиоизотопа с испусканием таких частиц, как  $\alpha$  или  $\beta$ , обычно сопровождается возбужденным состоянием дочернего ядра. Избыточная энергия дочернего ядра выделяется посредством испускания  $\gamma$  - квантов, электронов внутренней конверсии или образованием электронно-позитронных пар. Из этих процессов преобладающим является испускание  $\gamma$  -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  $\gamma$  -квантов высоких энергий уносится из калориметра. Учесть количество энергии, уносимой  $\gamma$  - излучением, достаточно сложно. Однако, как было отмечено ранее, в случае плутония потерянная энергия составляет небольшой процент от полной энергии распада его изотопов.

#### *Другие виды излучений*

Помимо первичных  $\alpha$  -,  $\beta$  -,  $\gamma$  - излучений радиоизотопы излучают также нейтроны в процессе спонтанного деления. Потеря энергии за счет нейтронного излучения на много порядков меньше полной энергии распада и может не учитываться, также как и потери, связанные с образованием вторичного излучения.

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.

#### **Определение удельной мощности**

Каждый радиоизотоп распадается с постоянной средней скоростью  $\lambda$  (распад/с) и освобождением при распаде энергию  $Q$  (МэВ). Скорость освобождения энергии для конкретного изотопа определяется соотношением, связывающим его активность и энергию распада:

$$W = QN\lambda, \quad (4.8.13)$$

где  $N$  – число радиоактивных атомов,  $N = N_0 \cdot m / A$ ;

$N_0$  – число Авогадро;

$m$  – масса радиоизотопа;

$A$  – атомная масса изотопа.

Так как  $\lambda = \ln 2 / T_{1/2}$ , где  $T_{1/2}$  – период полураспада изотопа (в годах), то мощность в ваттах, измеряемая калориметром, может быть определена с помощью выражения:

$$W = 2119,3Qm / (T_{1/2}A), \text{ Вт.} \quad (4.8.14)$$

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. Согласно уравнению 4.8.14, тепловая мощность, выделяемая в калориметре при радиоактивном распаде, прямо пропорциональна массе изотопа:

$$W = Pm. \quad (4.8.15)$$

Коэффициент пропорциональности  $P$  имеет физический смысл удельной тепловой мощности данного изотопа, измеренный в ваттах на грамм его массы. Удельная мощность изотопа может быть рассчитана с помощью уравнения 4.8.14, если известны соответствующие параметры (расчетный метод), или может быть определена экспериментально с помощью уравнения (4.8.15) (экспериментальный метод).

Значения удельной тепловой мощности и другие ядерные константы изотопов плутония приведены в табл. 4.8.2. Следует отметить, что удельная мощность  $^{238}\text{Pu}$  значительно превышает (почти в 250 раз) мощность  $^{239}\text{Pu}$  из-за более короткого периода полураспада. Удельная мощность  $^{241}\text{Am}$  также значительно больше мощности  $^{239}\text{Pu}$ , поэтому содержание  $^{241}\text{Am}$  во время калориметрического анализа должно учитываться. Проблема заключается в том, что содержание  $^{241}\text{Am}$  со временем возрастает, так как  $^{241}\text{Am}$  образуется при  $\beta$ -распаде  $^{241}\text{Pu}$  и поэтому тепловая мощность плутониевого образца также возрастает со временем. В процессе распада  $^{241}\text{Pu}$  до  $^{241}\text{Am}$  как материнские, так и дочерние ядра вносят свой вклад в полную мощность.

Таблица 4.8.2. Значения удельной мощности изотопов плутония

Изотоп	Удельная энергия распада $Q$ , МэВ	Тип распада	Период полураспада $T_{1/2}$ , лет	Удельная мощность, мВт/г
$^{238}\text{Pu}$	5,592	Альфа	87,74	567,57
$^{239}\text{Pu}$	5,243	Альфа	24119	1,9288
$^{240}\text{Pu}$	5,255	Альфа	6564	7,0824
$^{241}\text{Pu}$	0,0055	Бета	14348	3,412
$^{242}\text{Pu}$	4,985	Альфа	376300	0,1159
$^{241}\text{Am}$	5,640	Альфа	433,6	114,2

Так как реальные образцы плутония содержат разные количества различных изотопов, приведенных в табл. 4.8.2, то полная мощность является суммой мощностей каждого изотопа:

$$W = \sum_{i=1}^n m_i P_i, \quad (4.8.16)$$

где  $m_i$  – масса  $i$ -го изотопа;

$P_i$  – удельная мощность  $i$ -го изотопа;

$n$  – число всех изотопов плутония и  $^{241}\text{Am}$ .

Если  $R_i$  определить как массовую долю  $m_i/M$  для  $i$ -го изотопа, где  $M$  есть суммарная масса изотопов плутония, то

$$W = M \sum_{i=1}^n P_i R_i. \quad (4.8.17)$$

Для калориметрического анализа важным фактором является эффективная удельная мощность  $P_{эфф}$ , выражаемая в ваттах на грамм плутония и определяемая соотношением:

$$P_{эфф} = \sum_{i=1}^n P_i R_i. \quad (4.8.18)$$

В единицах эффективной мощности суммарная масса всех изотопов плутония задается выражением:

$$M = W / P_{эфф}. \quad (4.8.19)$$

Масса каждого конкретного изотопа равна

$$m_i = R_i W / P_{эфф}. \quad (4.8.20)$$

Для проведения точных калориметрических анализов должны быть очень хорошо известны значения эффективной удельной мощности образца. Эффективная удельная мощность может быть определена либо экспериментальным, либо расчетным методом.

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  $^{238}\text{Pu}$  и  $^{241}\text{Am}$ . Этот метод требует проведения как химического, так и калориметрического анализа образца. Калориметрический 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 4.8.19.

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 согласно уравнению 4.8.18 может быть рассчитана эффективная удельная мощность для данной смеси изотопов.

Относительное содержание изотопов может быть определено неразрушающими методами гамма-спектрометрии (см. раздел 4.5.3) или разрушающими методами масс-спектрометрии (см. раздел 4.7.2). Разрушающие методы должны включать методику определения содержания изотопа  $^{241}\text{Am}$ . Содержание изотопа  $^{238}\text{Pu}$  предпочтительнее измерять с использованием альфа-спектрометрии (см. раздел 4.4.2).

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. 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:

$$W = M \sum_{i=1}^n P_i R_i(t). \quad (4.8.21)$$

Уравнение 4.8.21 аналогично уравнению 4.8.17 за исключением того, что  $R_i(t)$  выражает зависимость массовых долей от времени. Для изотопов плутония:

$$R_i(t) = R_i(t_1) \exp[-\lambda_i(t - t_1)] / F(t), \quad (4.8.22)$$

где  $R_i(t)$  – массовая доля  $i$ -го изотопа плутония в момент времени  $t$ ;

$t_1$  – время проведения изотопного анализа плутония;

$\lambda_i$  – 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  $^{241}\text{Am}$  массовая доля обусловлена как распадом изотопа  $^{241}\text{Am}$ , так и накоплением за счет бета-распада изотопа  $^{241}\text{Pu}$ :

$$R_A = \frac{F(t_A)}{F(t)} R_A(t_A) \exp[-\lambda_A(t-t_I)] + K_1 K_2 \frac{R_1(t_1) \lambda_1 \exp[-\lambda_1(t_A-t_I)]}{F(t) \cdot (\lambda_1 - \lambda_A)}, \quad (4.8.23)$$

$$\cdot \{ \exp[-\lambda_A(t-t_A)] - \exp[-\lambda_1(t-t_A)] \}$$

где  $R_1(t_I)$  – массовая доля изотопа  $^{241}\text{Pu}$ , определенная в момент времени  $t_I$ ;

$R_A(t)$  – массовая доля изотопа  $^{241}\text{Am}$  относительно всего плутония в момент времени  $t$ ;

$t_A$  – время проведения анализа америция;

$\lambda_A$  – постоянная распада изотопа  $^{241}\text{Am}$ ;

$\lambda_1$  – постоянная распада изотопа  $^{241}\text{Pu}$ ;

$K_1$  – 0,9999754 вероятность распада  $^{241}\text{Pu}$  с образованием  $^{241}\text{Am}$ ;

$K_2$  – 0,999999905 отношение массовых чисел  $^{241}\text{Am}$  к  $^{241}\text{Pu}$ .

Если полная масса плутония известна на какой-то момент времени  $t_m$ , то его масса на любой момент времени в будущем составляет:

$$m(t) = m(t_m) F(t) / F(t_m). \quad (4.8.24)$$

#### **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. 4.8.10. Теплота, выделяемая во внутренней полости контейнера, повышает его температуру и создает тепловой поток через тепловое сопротивление в окружающую среду в соответствии с уравнением:

$$\frac{dQ}{dt} = k(T_{\text{кал}} - T_{\text{окр}}), \quad (4.8.25)$$

где  $Q$  – тепловая энергия;

$k$  – теплопроводность;

$T_{\text{кал}}$  – внутренняя температура калориметра;

$T_{\text{окр}}$  – температура внешней окружающей среды.

В зависимости от величины теплообмена калориметр может быть классифицирован как адиабатический или изотермический.

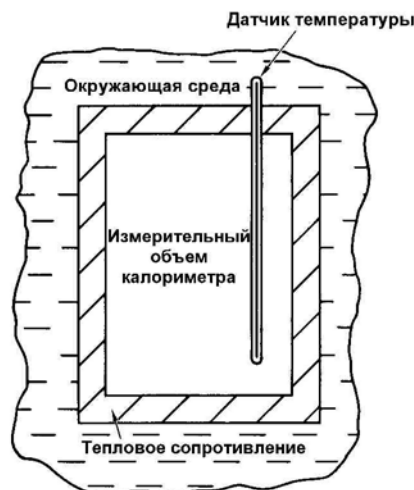


Рис. 4.8.10. Основные элементы калориметра: измерительный объем или внутренняя полость; датчик температуры; теплоизолирующий зазор; окружающая среда



### *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  $\Delta T$ , 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  $T_{окр}$  постоянным регулированием соответствовала  $T_{кал}$ , 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.

### *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, в соответствии с уравнением 4.8.25, 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 существу, 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.

### ***Типы калориметров теплового 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. В зависимости от конкретных требований окончательная конструкция прибора может совмещать отличительные особенности одного или нескольких типов калориметров.

### *Общие электрические характеристики калориметров*

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. 4.8.11. 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:

$$S = (BP_R - BP_0)W_R, \text{ мкВ/Вт} \quad (4.8.26)$$

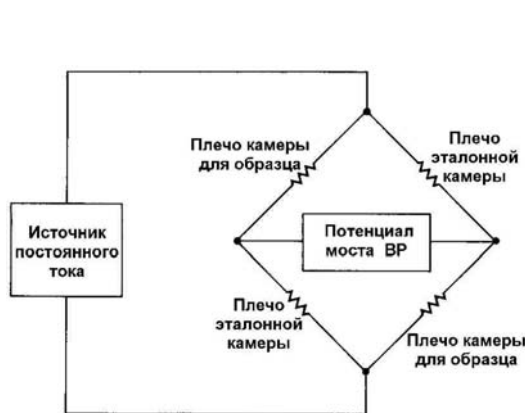


Рис. 4.8.11. Схема моста Уитстона

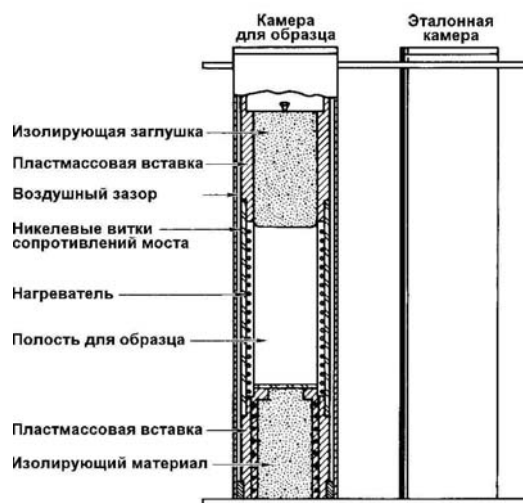


Рис. 4.8.12. Поперечное сечение типичного изотермического калориметра с двумя идентичными тепловыми камерами для образца и эталона

#### 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. На рис 4.8.12 показано поперечное сечение калориметра этого типа.

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 стироформа (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. 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 постоянной 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  $^{239}\text{Pu}$  на литр.

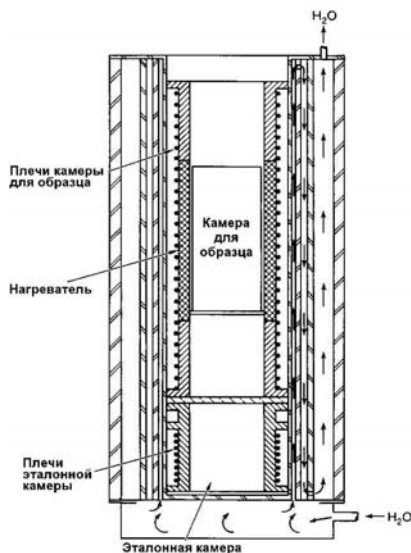


Рис. 4.8.13. Передвигной мостовой калориметр с верхней/нижней камерами с тонкой водяной рубашкой, в котором камера для образца расположена над эталонной камерой

#### *Мостовые калориметры с верхней/нижней камерами*

В конструкции калориметра с верхней/нижней камерами, камера для образца устанавливается над несколько укороченной эталонной камерой, как показано на рис. 4.8.13. 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 камерами может также использоваться для создания передвижного калориметра.

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.

#### *Градиентный мостовой калориметр*

Градиентный мостовой калориметр (рис. 4.8.14) состоит из ряда концентрических цилиндров, при этом цилиндр камеры для образца находится внутри цилиндра эталонной камеры. 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.

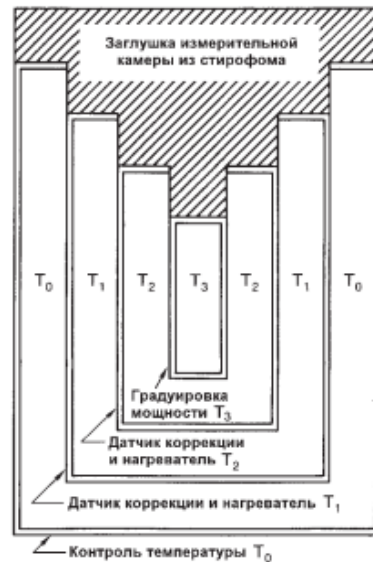


Рис. 4.8.14. Поперечное сечение калориметра с воздушной камерой, представляющего собой вариант градиентного мостового калориметра

### Методы работы с калориметрами теплового потока

#### 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 этапы:

1. Потенциал моста  $BP_0$  измеряется при пустой камере для образца, нулевой мощности нагревателя и контроле температуры окружающей среды. Обычно потенциал  $BP_0$  измеряется не для каждого образца, а с некоторой периодичностью.
2. Анализируемый образец помещается в калориметр и определяется равновесный потенциал моста  $BP_S$ .
3. Затем образец удаляется и рассчитывается ток нагревателя, необходимый для замещения тепловой мощности образца. Требуемая мощность нагревателя составляет приблизительно:

$$W_H (\text{приблиз.}) = (BP_S - BP_0) / S, \quad (4.8.27)$$

где  $S$  – чувствительность калориметра, определенная ранее с помощью уравнения 4.8.26.

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  $BP_H$ . Кроме того, фактическая точная мощность нагревателя  $W_H$  рассчитывается на основе измеренного тока и напряжения нагревателя.
5. Тогда тепловая мощность неизвестного образца равна

$$W_S = W_H + (BP_S - BP_H) / S, \text{ Вт.} \quad (4.8.28)$$

Приведенная выше процедура отображена на рис.4.8.15, где также показана дополнительная сложность, вызываемая медленными дрейфами в измерительном приборе.

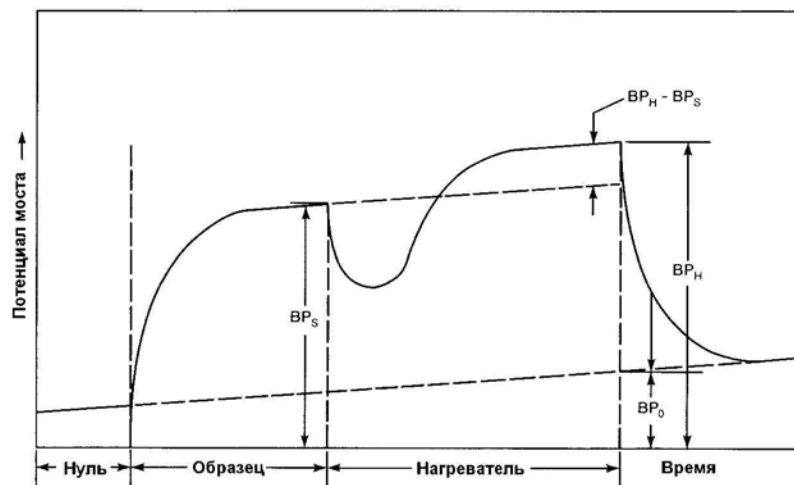


Рис. 4.8.15. Зависимость потенциала моста калориметра от времени, наблюдаемая по методу замещения. Верхние наклоны иллюстрируют дополнительную сложность, вызванную дрейфами градиентного измерительного устройства

#### 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.

При использовании дифференциального метода тепловая мощность образца в равновесном состоянии описывается уравнением

$$W_S = W_H + (BP_S - BP_M) / S, \text{ Вт.} \quad (4.8.29)$$

$BP_M$  представляет собой потенциал моста, рассчитанный на основе  $mW_H$ , где  $m$  – постоянная наклона. Величина  $(BP_S - BP_M) / S$  равна нулю, если мощность нагревателя точно соответствует мощности образца. Если же это не так, то данная величина компенсирует небольшие различия между ними. Постоянная  $m$  определяется во время градуировки пропусканием тока через последовательно включенные нагреватели образца и эталонной камеры.

#### 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:

$$W_S = W_0 - W_C, \text{ Вт.} \quad (4.8.30)$$

Контроль постоянной температуры калориметра может осуществляться с помощью аналоговых или цифровых схем. Цифровая схема обладает преимуществом, так как не требует регулировки по уравнению 4.8.30 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.

### ***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:

- тип калориметра теплового потока – двухэлементный мостовой, мостовой с верхней/нижней камерами или градиентный мостовой;
- тепловое сопротивление и теплоемкость материала, используемого в конструкции калориметра, и материал образца;
- качество конструкции калориметра – плотность подгонки деталей конструкции, однородность воздушных зазоров и т.д.;
- физический размер камеры для образца калориметра и диаметр образца;
- упаковка образца – расположение источников теплоты внутри упаковки, наличие полостей и т.д.;
- метод работы калориметра – замещение, дифференциальный или сервоконтроль постоянной температуры;
- использование предварительной подготовки образца;
- использование методик прогнозирования конечной точки достижения равновесного состояния;
- 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. 4.8.3 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.

Таблица 4.8.3. Некоторые временные характеристики анализа для двухэлементного мостового калориметра

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

### **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 4.8.26, 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  $BP_0$ . 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.

#### *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. 4.8.3. 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. 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.

*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 %.

Прогнозирование конечной точки основано на принципе, что функция отклика калориметра в основном описывается одной экспонентой в виде:

$$Y = A + Be^{-\lambda t}, \tag{4.8.31}$$

где  $Y$  – зависящая от времени величина выходного сигнала калориметра;

$A$  – величина выходного сигнала равновесия;

$B$  – коэффициент пропорциональности;

$\lambda$  – постоянная конечного теплового распада для калориметра и образца.

В действительности калориметр содержит различные тепловые области, каждая из которых, как показано на рис. 4.8.16, 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 4.8.31 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.

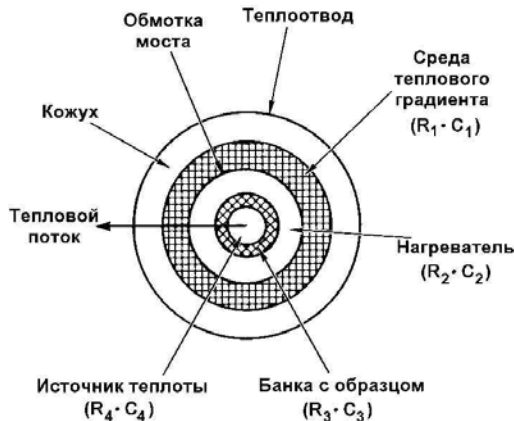


Рис. 4.8.16. Радиальное поперечное сечение идеализированного калориметра с четырьмя участками, каждый из которых имеет различные значения теплового сопротивления и теплоемкости



Рис. 4.8.17. Графическое представление метода прогнозирования конечной точки

Процедура расчета выходного сигнала равновесия  $A$  требует периодического определения выходного сигнала  $Y$  в течение анализа. После сглаживания величины  $Y$  и подгонки к уравнению 4.8.31 рассчитывается величина  $A$ . Эта процедура периодически повторяется по мере проведения анализа и определения все большего числа значений  $Y$ . На рис. 4.8.17 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.

#### ***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 важно, чтобы электрические или радиоизотопные стандартные образцы были сертифицированы.

#### ***Электрическая градуировка***

Методы электрической градуировки применимы для калориметрических методов, в которых мощность нагревателя дублирует или замещает тепловую мощность образца. 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 4.8.26). 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. 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 далее. Другим источником погрешности при электрической градуировке является потеря мощности в проводах нагревателя для калориметров с одной камерой.

#### ***Градуировка с использованием радиоизотопных источников теплоты***

Градуировка с использованием радиоизотопных источников теплоты более проста и обычно предпочтительна, так как охватывает все стороны работы калориметра. Например, 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. 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 так же, 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 так же, как и в случае электрической градуировки.

#### ***Источники погрешностей***

Как уже отмечалось ранее, определение содержания плутония является двухступенчатым процессом: определение мощности калориметром и определение эффективной удельной мощности экспериментальным или расчетным методами. Источники погрешностей анализа приведены в табл. 4.8.4. Они включают:

- неточность калориметрической системы – дисперсия отклика системы вследствие колебаний температуры помещения, температуры ванны, влажности, веса образца, ударов образца при загрузке и выгрузке и т.д.;
- погрешность теплового распределения – дисперсия отклика системы, обусловленная пространственным размещением образца в камере;
- погрешность градуировки – дисперсия отклика системы в зависимости от метода градуировки и используемых образцовых источников;
- 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:

- погрешности определения мощности образца;
- погрешности определения содержания плутония в образце.

При применении расчетного метода для определения эффективной удельной мощности, источниками погрешностей являются:

- погрешности определения изотопного состава образца;
- неопределенность значений удельной мощности.

Суммарная неопределенность анализа может быть оценена объединением погрешности определения мощности калориметром с неопределенностью эффективной удельной мощности:

$$\sigma(Pu) = \sqrt{\sigma^2(W) + \sigma^2(P_{эф})}. \quad (4.8.32)$$

*Таблица 4.8.4. Источники погрешностей калориметрического анализа*

Источник погрешности	Приблизительное значение погрешности, %
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 экспериментальным методом	
определение мощности образца	<0,2
определение содержания плутония в образце расчетным методом	<0,2
Определение изотопного состава	
концентрации <0,1 %	2–5
концентрации >0,1 %	1,5
концентрации >1 %	0,5
концентрации >20 %	0,3
неопределенность значений удельной мощности	<0,1

Значения погрешностей, приведенные в табл. 4.8.4, 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  $^{238}\text{Pu}$  и  $^{241}\text{Am}$ . 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. Обычно погрешность измерений мощности калориметром меньше, чем неопределенность, связанная с определением эффективной удельной мощности.

### **4.8.3 Плотнометрия**

Термин «плотнометрия» относится к измерению плотности материала, путем определения степени ослабления этим материалом электромагнитного излучения заданной энергии. 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. В некоторых случаях, измерение коэффициента пропускания гамма-излучения может

предоставить информацию не только об объемной плотности образца, но также по его количественному 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 данном разделе 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:

$$I = I_0 \exp(-\mu \rho x), \quad (4.8.33)$$

где  $\rho$  – плотность материала;

$\mu$  – массовый коэффициент ослабления, который оценивается для специфической 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. 4.8.18). Коэффициент пропускания образца определяется путем измерения интенсивности фотонов источника как при наличии ( $I$ ), так и в отсутствие ( $I_0$ ) материала образца.

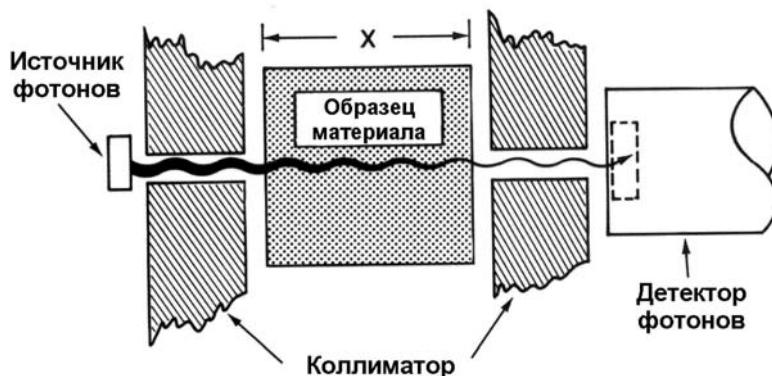


Рис. 4.8.18. Схема метода определения плотности с помощью фотонного источника

### Моноэнергетическая плотнометрия

#### 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  $\rho$ ) изменяющегося компонента. Обычно используются источники гамма-излучения дискретной энергии. Например, рассматривается двухкомпонентная система – раствор урана в азотной кислоте, компоненты которой имеют соответствующие плотности  $\rho$  и  $\rho_0$  и массовые коэффициенты ослабления  $\mu$  и  $\mu_0$  при заданной энергии гамма-излучения. Натуральный логарифм коэффициента пропускания фотонов при этой энергии определяется выражением:

$$LnT = -(\mu\rho + \mu_0\rho_0)x. \quad (4.8.34)$$

Для неизвестной концентрации (плотности  $\rho$ ) будет справедливым соотношение:

$$\rho = -\left(\frac{1}{\mu x}\right) \ln T - \frac{\mu_0\rho_0}{\mu}. \quad (4.8.35)$$

Уравнение 4.8.35 может применяться для измерения концентрации неизвестного количества вещества  $\rho$  при известной, тщательно контролируемой концентрации растворителя  $\rho_0$ .

При измерении концентрации ядерных материалов (урана и плутония) в растворах крайне необходимо, чтобы коэффициенты массового ослабления для растворителя  $\mu_0$  и ядерного материала  $\mu$  были определены корректно, и чтобы состав растворителя ( $\rho_0$ ) был хорошо известен и постоянен от образца к образцу. Образцы растворов должны быть защищены от загрязнений, поскольку они вызвали бы изменения в эффективных значениях  $\rho_0$  и  $\mu_0$ .

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.

#### *Точность измерений*

Рассматривается случай моноэнергетического измерения концентрации, при котором отсутствуют значительные флуктуации в составе растворителя. Точность измерения неизвестной величины  $\rho$  определяется статистической дисперсией коэффициента пропускания  $T$ . Относительная погрешность измерения плотности может быть получена путем дифференцирования уравнения 4.8.35:

$$\frac{\sigma(\rho)}{\rho} = \left(\frac{1}{\ln T}\right) \left[\frac{\sigma(T)}{T}\right]. \quad (4.8.36)$$

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:  $|LnT| > 1$  или  $T < 0,37$ ). Для больших значений коэффициента пропускания относительная погрешность определения плотности больше, чем относительная погрешность определения коэффициента пропускания, и, соответственно, ухудшается измерение. Следует отметить, 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  $LnT > 1$ ,  $\rho > \rho_c$ , то измерение проходит в подходящем режиме точности. Если  $\rho < \rho_c$  – 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 ( $\mu$ ), подлежащие измерению, и ожидаемый диапазон концентраций.

Вследствие симметрии  $\rho$  и  $x$  в уравнениях 4.8.33–4.8.35, уравнение 4.8.36 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 4.8.36 можно переписать в виде:

$$\frac{\sigma(\rho)}{\rho} = \left( \frac{1}{\ln T} \right) \left[ \frac{T+1}{I_0 T} \right]^{1/2} \quad (4.8.37)$$

График этого соотношения на рис. 4.8.19 показывает ухудшение точности измерения при высокой и низкой концентрациях. В соответствии с определением  $\rho_c$ , 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.

Следует отметить, что вышеприведенное обсуждение связано с погрешностью измерений, определяемой только счетной статистикой. В общем случае, дополнительные флуктуации результатов измерений могут вызвать и другие факторы, включая изменения в материале матрицы (растворителя) и возможные инструментальные погрешности.

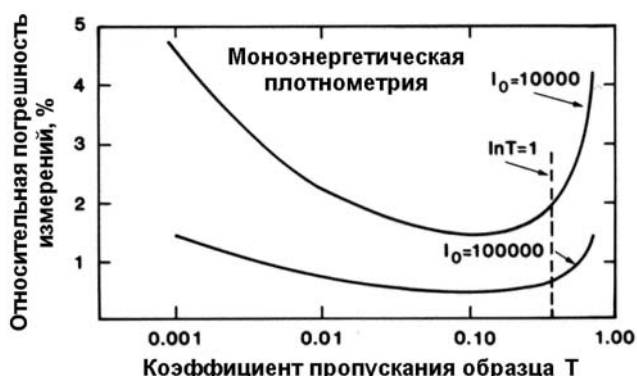


Рис. 4.8.19 Зависимость погрешности измерения методом моноэнергетической плотнометрии от коэффициента пропускания образца для двух значений полного числа отсчетов падающих фотонов

Погрешность средств измерения должна определяться путем выполнения дополнительных (повторных) измерений известных стандартных образцов, представляющих полный диапазон свойств образца и растворителя.

#### **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.

*Анализ двухэнергетического случая*

Рассматривается смесь двух компонентов с неизвестными концентрациями  $\rho_1$  и  $\rho_2$ . Предполагается, что массовый коэффициент ослабления  $i$ -го компонента, измеренный при  $j$ -й энергии, может быть описан уравнением:

$$\mu_i^j = \mu_i(E_j), \quad (4.8.38)$$

и определим коэффициент пропускания при  $j$ -й энергии как

$$T_j = \exp[-(\mu_1^j \rho_1 + \mu_2^j \rho_2)x]. \quad (4.8.39)$$

Измерение двух коэффициентов пропускания дает два уравнения для двух неизвестных концентраций:

$$\begin{aligned} (-\ln T_1)/x &= M_1 = \mu_1^1 \rho_1 + \mu_2^1 \rho_2, \\ (-\ln T_2)/x &= M_2 = \mu_1^2 \rho_1 + \mu_2^2 \rho_2. \end{aligned} \quad (4.8.40)$$

Приписывая измеренное поглощение двум компонентам образца, фактически определяется значение интенсивности падающего излучения, которая является интенсивностью, прошедшей пустой контейнер для образца. Решениями указанных выше уравнений являются следующий набор равенств:

$$\begin{aligned} \rho_1 &= (M_1 \mu_2^2 - M_2 \mu_2^1) / D, \\ \rho_2 &= (M_2 \mu_1^1 - M_1 \mu_1^2) / D, \\ D &= \mu_1^1 \mu_2^2 - \mu_2^1 \mu_1^2. \end{aligned} \quad (4.8.41)$$

Чтобы уравнения 4.8.40 имели решения, знаменатель  $D$  в выражениях 4.8.41 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 энергии фотона. Первый, если используются две значительно отличающиеся энергии, то различия в наклоне кривой зависимости  $\mu$  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  $Z$ ) выбираются близлежащие энергии фотонов, находящиеся на обеих сторонах края поглощения, то окажется, что энергетическая зависимость для массового коэффициента ослабления материала с 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.

*Точность измерения*

Основным источником случайной неопределенности измерения является статистическая дисперсия результатов измерений коэффициента пропускания. Выражение для относительной погрешности концентрации каждого компонента имеет следующий вид:

$$\begin{aligned} \frac{\sigma(\rho_1)}{\rho_1} &= \frac{1}{\mu_1^1 \ln T_2 - \mu_2^1 \ln T_1} \left\{ \left[ \mu_2^2 \frac{\sigma(T_1)}{T_1} \right]^2 + \left[ \mu_2^1 \frac{\sigma(T_2)}{T_2} \right]^2 \right\}^{1/2}, \\ \frac{\sigma(\rho_2)}{\rho_2} &= \frac{1}{\mu_1^2 \ln T_1 - \mu_1^1 \ln T_2} \left\{ \left[ \mu_1^2 \frac{\sigma(T_1)}{T_1} \right]^2 + \left[ \mu_1^1 \frac{\sigma(T_2)}{T_2} \right]^2 \right\}^{1/2}. \end{aligned} \quad (4.8.42)$$

Следует отметить, что поскольку результат анализа изменяется обратно пропорционально толщине образца (см. уравнение 4.8.40), то толщина образца  $x$  должна быть очень хорошо известна или оставаться постоянной в пределах небольшого допуска.

#### *Распространение на случай большего числа значений энергий*

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.

#### **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. В неразрушающем анализе ядерных материалов используются как *K*-, так и *L*-края поглощения. На рис. 4.8.20 показаны коэффициенты ослабления для плутония, урана и некоторых материалов с низким *Z*, включая *K*- 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.

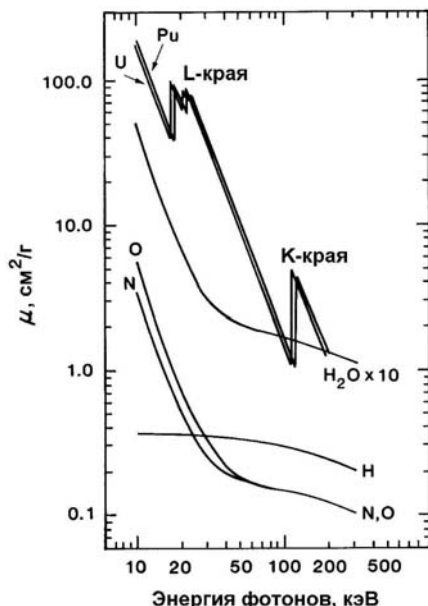


Рис. 4.8.20. Энергетическая зависимость массовых коэффициентов ослабления фотонов для урана, плутония и некоторых материалов с низким *Z*

#### *Описание методики измерений*

Рассматривается типичный случай ядерного материала — компонента с высоким *Z* в матрице (растворителе) с низким *Z*. На рис. 4.8.21 приведены коэффициенты ослабления и энергии измерения выше (*U*) и ниже (*L*) края поглощения. В примере, 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* — к элементам матрицы с

высоким и низким  $Z$ , соответственно. Величины скачков коэффициентов поглощения  $D_m$  и рассматриваемые энергии краев поглощения приведены в табл. 4.8.5.

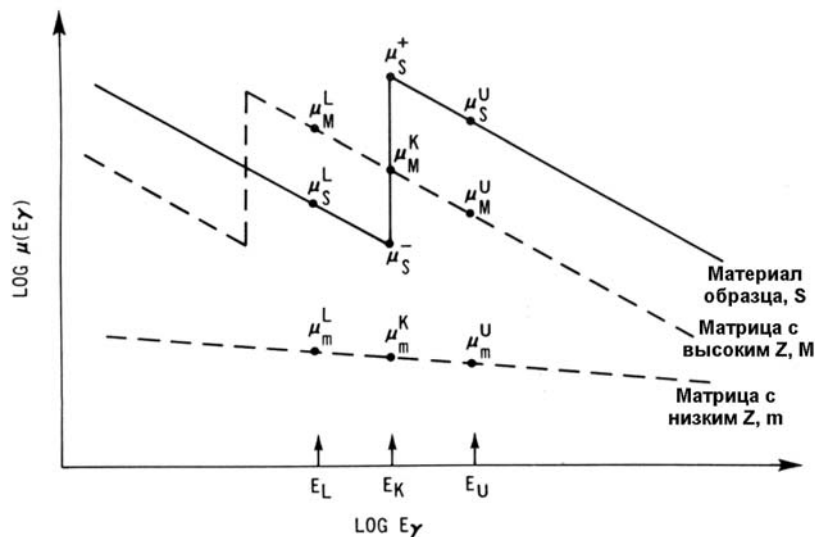


Рис. 4.8.21. Увеличенное схематическое изображение массового коэффициента ослабления в виде функции энергии фотонов. Показаны кривые для материала образца (S), предположительно тяжелого элемента, компонента матрицы (M), являющегося тяжелым элементом, и компонента матрицы (m), являющегося легким элементом

Таблица 4.8.5. Энергии краев поглощения и скачки поглощения для отдельных компонентов ядерных материалов

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 <sup>2</sup> /г	3,4 см <sup>2</sup> /г
$\Delta\mu(L_{III})$	55,0 см <sup>2</sup> /г	52,0 см <sup>2</sup> /г

Приведенная ниже система уравнений позволяет определить коэффициент пропускания фотонов через раствор при двух энергиях измерения  $E_U$  и  $E_L$ :

$$\begin{aligned} \ln T_L &= -(\mu_s^L \rho_s + \mu_m^L \rho_m) x, \\ \ln T_U &= -(\mu_s^U \rho_s + \mu_m^U \rho_m) x. \end{aligned} \quad (4.8.43)$$

Решением для концентрации измеряемого элемента является выражение:

$$\rho_s = \frac{1}{\Delta\mu x} \ln\left(\frac{T_L}{T_U}\right) + \rho_m \left(\frac{\Delta\mu_m}{\Delta\mu}\right), \quad (4.8.44)$$

где  $\Delta\mu = \mu_s^U - \mu_s^L > 0$ ,

$\Delta\mu_m = \mu_m^L - \mu_m^U > 0$ .

Второй член в уравнении 4.8.44 выражает вклад от матрицы растворителя. Поскольку коэффициенты пропускания измеряются относительно пустого контейнера для образца, коэффициент пропускания самого контейнера для образца не влияет на уравнение 4.8.44. Следует отметить схожесть уравнения 4.8.44 с одноэнергетическим случаем (уравнение 4.8.35), при замене  $\mu$  на  $\Delta\mu$ .

Поскольку член матрицы в уравнении 4.8.44 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.

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 элементов, края поглощения которых лежат между энергиями фотонов источника излучения пропускания.

#### *Точность измерения*

Дифференцирование уравнения 4.8.44 дает относительную погрешность измерения плотности, определяемую выражением:

$$\frac{\sigma(\rho_s)}{\rho_s} = \left( \frac{1}{\Delta\mu \rho_s x} \right) \left[ \frac{\sigma(R)}{R} \right] = \left( \frac{1}{\ln R} \right) \left[ \frac{\sigma(R)}{R} \right], \quad (4.8.45)$$

Частично погрешность в  $R$  определяется статистикой измерений коэффициента пропускания. По аналогии с обсуждением уравнения (4.8.36), 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  $\rho_c$ , 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. 4.8.6 приведены значения  $\rho_c$  для 1 см длины пути прохождения излучения ( $x = 1$  см). Предполагается, например, что для измерительной ячейки для образца толщиной 1 см, анализ по  $K$ - 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  $K$ - краю.

*Таблица 4.8.6. Характеристические концентрации для урана и плутония*

Характеристическая концентрация	Концентрация урана, г/л	Концентрация плутония, г/л
$\rho_c(K)$	270	294
$\rho_c(L_{III})$	18	19

#### *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. 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%). 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 плотномеры по краю поглощения обычно выполняются для конкретных задач анализа в точно определенных диапазонах концентраций растворов ядерных материалов, минимальный порог обнаружения практически не важен.

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 плотномера по краю поглощения, фон должен быть определен таким образом, чтобы можно было выделить минимальный обнаруживаемый измеряемый сигнал. Статистическая неопределенность измеренной плотности дается уравнением 4.8.45. 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

$$T_U \approx T_L = \exp(-\mu_m \rho_m x). \quad (4.8.46)$$

Когда концентрация ядерного материала равна нулю,  $R=1$ , и из определения  $T$  будет следовать выражение:

$$\sigma(\rho) = \frac{1}{\Delta\mu x} \left( \frac{1}{I_{0U}} + \frac{1}{I_{0L}} + \frac{1}{T I_{0U}} + \frac{1}{T I_{0L}} \right)^{1/2}. \quad (4.8.47)$$

Уравнение 4.8.47 выражает неопределенность значения фона. Критерий «трех сигм» дает выражение для минимального порога обнаружения (или чувствительности  $s$ ) для плотномера по краю поглощения:

$$s = \frac{3}{\Delta\mu x} \left[ \left( \frac{1}{I_{0U}} + \frac{1}{I_{0L}} \right) \left( \frac{T+1}{T} \right) \right]^{1/2}, \text{ г/л}, \quad (4.8.48)$$

где  $\Delta\mu x$  измеряется в  $\text{см}^3/\text{г}$ .

Уравнение 4.8.48 показывает, что чувствительность плотномера 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.

#### *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 4.8.44. Этот член может стать существенным для низких концентраций ядерного материала  $\rho_s$  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. 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:

$$\log \mu(E) = k \log E + B. \quad (4.8.49)$$

Коэффициент наклона  $k$  обычно одинаков для элементов с  $Z > 50$ , со средним значением приблизительно  $-2,55$  вблизи  $K$ -краев урана и плутония. В табл. 4.8.7 представлены выбранные значения коэффициентов наклона и пересечения прямой с осью для нескольких веществ, представляющих интерес для анализа ядерного материала.

В качестве примера общего случая анализа рассматривается раствор ядерного материала в растворителе с низким  $Z$ , с возможными дополнительными загрязнениями матрицы тяжелыми элементами ( $Z > 50$ ). Уравнение 4.8.44 обобщается до выражения:

$$\rho_s = \left( \frac{1}{\Delta \mu x} \right) \ln \left( \frac{T_L}{T_U} \right) + \rho_M \left( \frac{\Delta \mu_M}{\Delta \mu} \right) + \rho_m \left( \frac{\Delta \mu_m}{\Delta \mu} \right). \quad (4.8.50)$$

Нижний индекс  $M$  относится к загрязнению матрицы с высоким  $Z$ , а индекс  $m$  представляет матрицу с низким  $Z$  (растворитель);

$$\text{по аналогии с уравнением 4.8.45 } \Delta \mu_M = \mu_M^L - \mu_M^U.$$

Измеренные коэффициенты пропускания экстраполируются к  $K$ -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:

$$\rho_s = \left( \frac{1}{\Delta \mu_{\pm} x} \right) \ln \left( \frac{T_L^a}{T_U^b} \right) + \left( \frac{c \mu_m^K \rho_m}{\Delta \mu_{\pm}} \right), \quad (4.8.51)$$

где  $\Delta \mu_{\pm}$  (который равен  $\mu_s^+ - \mu_s^-$ , см. рис. 4.8.19) теперь определяется вдоль края поглощения (в данном случае  $K$ -края), а не между энергиями  $E_L$  и  $E_U$ . Постоянные  $a, b, c$  определяются как:

$$\begin{aligned} a &= (E_K / E_L)^k, \\ b &= (E_K / E_U)^k, \\ c &= (E_K / E_L)^{k-k'} - (E_K / E_U)^{k-k'}, \end{aligned} \quad (4.8.52)$$

где  $k = -2,55$ ,  $a, k' = -0,33$  (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  $\rho_m$  и молярность кислоты  $M$  связаны между собой отношением:

$$\rho_m = 1 + 0,33M. \quad (4.8.53)$$

Таблица 4.8.7. Коэффициенты наклона  $k$  и пересечение  $B$  для линейной зависимости десятичных логарифмов  $\log \mu(E)$  от  $\log(E)$  для различных анализируемых материалов в энергетической области от 100 до 150 кэВ

Компонент раствора	$k$	$B$
Плутоний (выше $K$ - края)	-2,48	5,83
(ниже $K$ - края)	-2,56	5,42
Уран (выше $K$ - края)	-2,49	5,82
(ниже $K$ - 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  $K$  - краю плутония, для которого значение энергии  $K$  - края близко к значениям энергий гамма-излучения  $^{57}\text{Co}$  и  $^{75}\text{Se}$ , эта поправка на матрицу с низким  $Z$  мала, однако, может оказаться значимой при низких концентрациях плутония. Например, поправочный член в уравнении 4.8.51 для 3 М азотной кислоты эквивалентен приблизительно 0,87 г Pu/л. Уравнение 4.8.53 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  $K$  - краю с источником излучения  $^{169}\text{Yb}$  ( $E_L=109,8$  кэВ,  $E_U=130,5$  кэВ) процедура экстраполяции значительно улучшает качество результатов анализа.

#### Выбор методики измерений

Из-за различий в значениях  $\Delta\mu$  на  $K$  - крае и  $L_{III}$  - крае, чувствительность измерения (определенная в уравнении 4.8.48) по  $L_{III}$  - краю, более чем на порядок выше чувствительности измерения по  $K$  - краю при других равных параметрах (см. также табл. 4.8.5). Однако, вследствие более высокой проникающей способности фотонов с энергиями в области  $K$  - края, для измерений по  $K$  - 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  $K$  - края этих элементов обусловят дискретные интерференции, смещающие результаты анализа урана и плутония по  $L_{III}$  - краю. 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  $K$  - краю не подвержены таким интерференциям. Кроме того, более высокие энергии фотонов, необходимые для измерений коэффициентов пропускания по  $K$  - 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  $K$  - краю имеет место большая гибкость при использовании дискретных источников гамма-излучения.

#### 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  $K$  - краю поглощения. Для долговременной надежной работы в энергетических диапазонах как  $K$  - 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  $K$  - 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  $K$  - краю ( $E_K=121,8$  кэВ) является гамма-излучение с энергией 121,1 кэВ от  $^{75}\text{Se}$  (период полураспада 120 дней) и гамма-излучение с энергией 122,1 кэВ от  $^{57}\text{Co}$  (период полураспада 270 дней). Близость обоих значений энергий к краю поглощения плутония минимизирует эффекты матрицы и повышает чувствительность анализа. Из-за разных периодов полураспада требуются точные поправки на радиоактивный распад или частые измерения неослабленных интенсивностей  $I_0$ . Применение  $^{169}\text{Yb}$  (период полураспада 32 дня) для анализа урана по  $K$  - краю обладает тем преимуществом, что не требуется поправка на распад, поскольку оба гамма-кванта происходят из 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 и меньшей чувствительности анализа (меньший  $\Delta\mu$ ). Кроме того, чтобы поддерживать приемлемую счетную статистику, источник должен часто заменяться вследствие короткого периода полураспада  $^{169}\text{Yb}$ . Методика экстраполяции, рассматриваемая ранее, особенно эффективна для снижения чувствительности к матрице.

#### ***Примеры использования моноэнергетических плотномеров***

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  $\mu_0 / \mu$  (см. уравнение 4.8.35) и, таким образом, снижения чувствительности к изменениям в матрице с низким  $Z$ .

В одном из измерительных устройств используется источник излучения  $^{241}\text{Am}$ , установленный в центре круглой измерительной ячейки, содержащей раствор ядерного материала. Ячейка окружена пластмассовым сцинтиллятором с  $4\pi$  - 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 ядерных материалов ( $>200$  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. Гамма-кванты  $^{171}\text{Tm}$  с энергиями 67 и 76 кэВ и гамма-кванты  $^{170}\text{Tm}$  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  $0,2$  г/см<sup>3</sup> при доверительной вероятности 95 %.

#### ***Примеры использования двухэнергетических плотномеров***

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. Источник излучения обеспечивает гамма-излучение с двумя сильно отличающимися энергиями (122 кэВ от  $^{57}\text{Co}$  и 1173 и 1332 кэВ от  $^{60}\text{Co}$ ), так что чувствительность к двум компонентам базируется на разных коэффициентах наклона зависимости  $\mu$  от  $E$  при низких и высоких  $Z$ . В этом случае применяется уравнение 4.8.41. Спеченные топливные таблетки, содержащие от 92 до 95 % тория и от 5 до 8 %  $^{238}\text{U}$ , 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 компонентов ядерных материалов, путем измерения коэффициентов пропускания при двух низких энергиях гамма-излучения. Энергии пропускаемого излучения выбирались таким образом, чтобы охватить  $L$ - края поглощения компонента с более высоким  $Z$  (элемент 2) и чтобы в уравнении 4.8.40 выполнялись условия:  $\mu_1^1 > \mu_1^2$  и  $\mu_2^1 = \mu_2^2$ . Таким образом, уравнение 4.8.40 можно решить, получив концентрацию элемента 1 независимо от элемента 2:

$$\rho_1 = \left( \frac{1}{\Delta\mu_1 x} \right) \ln \left( \frac{T_1}{T_2} \right), \quad (4.8.54)$$

где  $\Delta\mu_1 = \mu_1^1 - \mu_1^2$ . Затем измеренные величины  $T_2$  и  $\rho_1$  используются для определения концентрации элемента 2:

$$\rho_2 = \left( \frac{LnT_2}{\mu_2^2} \right) - \frac{\rho_1 \mu_1^2}{\mu_2^2}. \quad (4.8.55)$$

Двухэнергетическая плотнометрия применяется к анализу тория и урана с использованием вторичных источников рентгеновского излучения  $K_\alpha$ -серии ниобия и йода (с энергиями 16,6 и 28,5 кэВ, соответственно), возбуждаемого источником  $^{241}\text{Am}$  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 и высокого разрешения. 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.

#### **Примеры использования плотномеров 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  $K$ - краю или  $L_{III}$ - краю (см. рис. 4.8.22). Устройства были разработаны для применений в технологических процессах извлечения ядерных материалов из растворов скрапа или переработки. В каждом измерительном устройстве используется гамма-спектрометр высокого разрешения (обычно с детектором из особо чистого германия для анализов по  $K$ - 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 ( $\leq 30$  мин).

Источники излучения, используемые в измерительных системах по  $K$ -краю, представляют собой источники дискретного гамма-излучения или источники непрерывного тормозного излучения (рентгеновского излучения). Для дискретного анализа урана по  $K$ - краю используются гамма-кванты  $^{169}\text{Yb}$  с энергиями 109,8 и 130,5 кэВ, а для дискретного анализа плутония по  $K$ - краю – гамма-кванты  $^{75}\text{Se}$  и  $^{57}\text{Co}$  с энергиями 121,1 и 122,1кэВ. В измерительных системах по  $L_{III}$ - краю используются только рентгеновские генераторы.

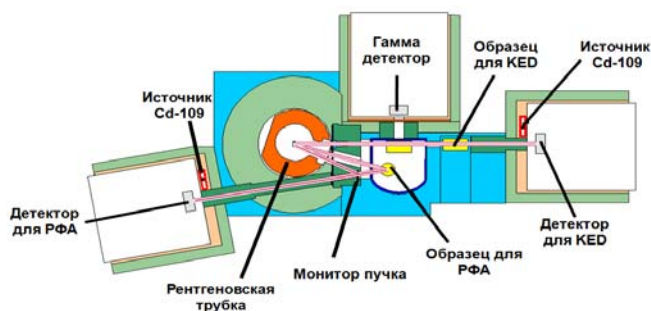


Рис. 4.8.22. Схема и внешний вид системы измерений ядерных материалов по К-краю поглощения в Институте трансураниевых элементов (г. Карлсруэ).

Анализ по краю поглощения основан на уравнении 4.8.44. Точность анализа (уравнение 4.8.45) 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.

## ЛІТЕРАТУРА

- 1 Amiel S., Gilat J. Uranium content of chondrites by thermal neutron activation and delayed neutron counting. – *Geochim. at cosmochim. acta*, 1967, v. 31, p. 1499.
- 2 C. Feggi, G. Frenquelucci, G. Perdisa. Isotope correlations based on fission-product nuclides in LWR irradiated fuels. – IAEA, Vienna, 1976, p. 425.
- 3 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).
- 4 C.L. Fellers and P.W. Seabaugh, "Real-Time Prediction of Calorimetric Equilibrium," *Nuclear Instruments and Methods*, 163, 499 (1979).
- 5 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.
- 6 Clifford R. Rudy. Overview of Calorimetric Assay of Plutonium in the United States. – ESARDA, 23rd annual meeting, Bruges, Belgium, 8–10 May, 2001.
- 7 CRC Handbook of Radioanalytical Chemistry. Volume I /editors Juraj Tolgyessy and Erno Bujdoso. Library of Congress Card Number 90-26590.
- 8 Currie, Lloyd A. 1968. Limits for Qualitative Detection and Quantitative Determination: Application to Radiochemistry. *Analytical Chemistry*.
- 9 D. A. Rakel, "Gamma-Ray Measurements for Simultaneous Calorimetric Assay," *Nuclear Material Management X*, 467 (1981).
- 10 D. Donohue, S. Vogt, A. Ciurapinski, F. Ruedenauer, M. Hedberg Particle Analysis of Environmental Swipe Sample, IAEA-SM-367/10/07.
- 11 D. Arnold, M. Blaauw, S. Fazinic, V.P. Kolotov. The 2002 IAEA intercomparison of software for low-level  $\gamma$ -ray spectrometry. – *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*. V.536, Issues 1–2, 1 January 2005, pages 196–210.
- 12 D.H. Wilkinson, *Ionization Chambers and Counters* (Cambridge University Press, Cambridge, Massachusetts, 1950).
- 13 D.R. Terry, "Development of IAEA Safeguards Measurements for Enrichment Plants," *Transaction of the American Nuclear Society* 50, 176 (1985).
- 14 D.T. Vo, P.A. Russo, T.E. Sampson. Comparisons Between Digital Gamma-Ray Spectrometer (DSPec) and Standard Nuclear Instrumentation Methods (NIM) Systems. – LA-13393-MS, March 1998.
- 15 E. Adams, "Deadtime Measurements for the AWCC," Los Alamos National Laboratory memorandum Q-1-82-335 to H. Menlove (April 29, 1982).
- 16 E.P. Bertin, *Principles and Practice of X-Ray Spectrometric Analysis* (Plenum Press, New York, 1975).
- 17 E. Sakai, "Present Status of Room-Temperature Semiconductor Detectors," *Nuclear Instruments and Methods* 196, 121 (1982).
- 18 F. Adams and R. Dams. *Applied Gamma-Ray Spectrometry*. – New York: Pergamon Press, 1975.
- 19 Francis X. Haas and Walter Strohm, "Gamma-Ray Spectrometry for Calorimetric Assay of Plutonium Fuels," *IEEE Transactions on Nuclear Science* NS-22, 734 (1975).
- 20 *Gamma- and X-Ray spectrometry with semiconductor detector*. – Klaus Debertain, Richard G. Helmer North-Holland, Amsterdam, Oxford, New York, Tokyo, 1988.
- 21 Greer G.R., Walker J. // *Radiation Measurements in Nuclear Power*. 1966. p.270.
- 22 *Guide to activation analysis*. Ed. W. S. Lyon (Jr.). D. Nan Nostrand Inc., London, 1964.
- 23 H. Ottmar, h. Eberle et al. Analysis of Th-U, U-Pu and Pu Solutions with a Hybrid K-Edge/XRF Analyser. – *Proceedings of the 13th ESARDA Symposium, Ispra, Italy, 1991*, pp. 149-157.
- 24 *Handbook of Nuclear Safeguard Measurement Methods*// edited by: Donald R. Rogers, Monsanto Fellow: Monsanto Research Corporation, Mound Laboratory, Miamisburg, OH 45342// prepared for: Division of Facility Operations Office of Nuclear Regulatory Commission, Washington, DC 20555. – 1983.
- 25 INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, *Safeguard Techniques and Equipment*, International Nuclear Verification Series No1 (revised). Vienna. 2003 Edition. p. 92.
- 26 International Organization for Standardization (ISO). 2000. *Determination of the Detection Limit*



- and Decision Threshold for Ionizing Radiation Measurements . Part 1: Fundamentals and Application to Counting Measurements without the Influence of Sample Treatment. ISO 11929-1. ISO, Geneva, Switzerland.
- 27 International Organization for Standardization (ISO). 2000. Determination of the Detection Limit and Decision Threshold for Ionizing Radiation Measurements . Part 2: Fundamentals and Application to Counting Measurements with the Influence of Sample Treatment. ISO 11929-2. ISO, Geneva, Switzerland.
  - 28 International Organization for Standardization (ISO). 2000. Determination of the Detection Limit and Decision Threshold for Ionizing Radiation Measurements . Part 3: Fundamentals and Application to Counting Measurements by High-resolution Gamma Spectrometry, without the Influence of Sample Treatment. ISO 11929-2. ISO, Geneva, Switzerland.
  - 29 ISO 3534-1:1993 Statistics-Vocabulary and symbols – Part 1: Statistical methods. Terms and definitions.
  - 30 ISO 3534-2:1993 Statistics-Vocabulary and symbols – Part 2: Statistical quality control.
  - 31 ISO 3534-3:1985 Statistics-Vocabulary and symbols – Part 3: Design of experiments.
  - 32 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).
  - 33 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).
  - 34 J.B. Birks, The Theory and Practice of Scintillation Counting (Pergamon Press, Oxford, 1964).
  - 35 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).
  - 36 J.E. Swansen, P.R. Collinsworth, M.S. Krick. Shift-Register Coincidence Electronics System for Thermal Neutron Counter.– Nuclear Instruments and Methods, 176, 555 (1980).
  - 37 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.
  - 38 J.M Los Arcosa, Menno Blaauw, S. Fazinic, V.P. Kolotov. The 2002 IAEA test spectra for low-level  $\gamma$ -ray spectrometry software. – Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment. V.536, Issues 1–2 , 1 January 2005, Pages 189-195.
  - 39 K. Boehnel, "Determination of Plutonium in Nuclear Fuels Using the Neutron Coincidence Method" KFK2203, Karlsruhe, 1975, and AWRE Translation 70 (54/4252), Aldermaston, 1978.
  - 40 L.A. Kull and R.O. Ginaven, "Guidelines for Gamma-Ray Spectroscopy Measurements of  $^{235}\text{U}$  Enrichment," Brookhaven National Laboratory report BNL-50414 (1974).
  - 41 "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).
  - 42 "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).
  - 43 M. E. Anderson and J. F. Lemming, "Selected Measurement Data for Plutonium and Uranium," Mound Laboratory report MLM-3009 (1982).
  - 44 M. Krick and J. Swansen, "Neutron Multiplicity and Multiplication Measurements," Nuclear Instruments and Methods 219,384 (1984).
  - 45 M.S. Krick, R. Schenkel and K. Boehnel. Progress in Neutron Coincidence Counting Techniques. - Report of the IAEA, Advisory Group Meeting, Vienna, Austria, 7-11 October 1985.
  - 46 M.S. Krick, R. Schenkel, and K. Boehnel, in "Progressing 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.
  - 47 M. Stephens, J. Swansen, and L. East, "Shift Register Neutron Coincidence Module," Los Alamos Scientific Laboratory report LA-6121-MS (1975).
  - 48 Measurement of radionuclides in food and environment. A guidebook // STI/DOC/10/295. – Vienna: IAEA. 1989. – 169c.
  - 49 Mele, M. Ravnik, A. Trkov, "TRIGA Mark II Benchmark Experiment, Part II: Pulse Operation," Nuclear Technology 105, 52–58, 1994.

- 50 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.
- 51 N. Ensslin, M. Evans et al. Neutron Coincidence Counter for Plutonium Measurements. – Nuclear Materials Management, VII (2), 43 (1978).
- 52 N. Ensslin, M. Evans, H. Menlove, and J. Swansen, "Neutron Coincidence Counters for Plutonium Measurements," Nuclear Materials Management VII (2), 43(1978).
- 53 Nuclear Forensic Analysis/ Kenton James Moody, Ian D. Hutchem, Patricia Grant, ISBN-0-8493-15B-1: CRC Press. – 2005.
- 54 Nuclear Safeguards, Security, and Nonproliferation. Achieving Security with Technology and Policy// editor James E. Doyle. – 2008, Elsevier Inc.
- 55 P. Siffert et al., "Cadmium Telluride Nuclear Radiation Detectors," IEEE Transactions on Nuclear Science NS 22, 211 (1975).
- 56 P.A. Russo, S.T. House et. al. Nuclear Safeguard Application of Energy-Dispersive Absorption-Edge Densitometry. – Nuclear Materials Management, 9, 1981, p. 730
- 57 Passive Nondestructive Assay of Nuclear Materials //edited by: Doug Reilly, Norbert Ensslin, Hasting Smith// Los Alamos National Laboratory// prepared for: Office of Nuclear Regulatory Research U.S. NRC, Washington, DC 20555. – 1991.
- 58 Physics and Engineering of Radiation Detection. Syed Naeem Ahmed, Queen's University, Kingston, Ontario. 2007 Academic Press Inc. Published by Elsevier 2007.
- 59 Practical Gamma-ray Spectrometry, 2nd Edition, Gordon R. Gilmore, Nuclear Training Services Ltd Warrington, UK, John Wiley & Ltd, 2008.
- 60 Radiation Detection and Measurement, 4th Edition, Glenn F. Knoll, Professor Emeritus of Nuclear Engineering and Radiological Sciences, University of Michigan, Ann Arbor, Michigan, John Wiley & Sons, Inc., 2010.
- 61 R. A. Meyer, "Multigamma-Ray Calibration Sources," Lawrence Livermore Laboratory report M-100 (1978).
- 62 R. B. Walton, E. I. Whitted, and R. A. Foster, "Gamma-Ray Assay of Low-Enriched Uranium Waste," Nuclear Technology 24, 81–92 (1974).
- 63 R. Gannink, W. D. Ruther et al. MGAU. Новая программа для измерения степени обогащения U-235.– Lawrence Livermore National Laboratory, USA, UCRL-JR-114713.
- 64 R. Gunnink, "An Algorithm for Fitting Lorentzian-Broadened K-Series X-Ray Peaks of the Heavy Elements," Nuclear Instruments and Methods 143, 145 (1977).
- 65 R. Gunnink, "Computer Techniques for Analysis of Gamma-Ray Spectra," Lawrence Livermore Laboratory report UCRL-80297 (1978).
- 66 R. Gunnink, "Use of Isotope Correlation Techniques to Determine  $^{242}\text{Pu}$  Abundance," Nuclear Materials Management 9 (2), 83-93 (1980).
- 67 R. Gunnink, J. B. Niday, and P. D. Siemens, "A System for Plutonium Analysis by Gamma-Ray Spectrometry. Part I: Techniques for Analysis of Solutions," Lawrence Livermore Laboratory report UCRL-51577, Part I (April 1974).
- 68 R. Hagenauer, "Nondestructive Determination of Uranium Enrichment Using Low-Energy X and Gamma Rays," Nuclear Materials Management XI, 216 (1982).
- 69 R. Jenkins, R. W. Gould, and D. Gedcke, Quantitative X-Ray Spectrometry (Marcel Dekker, Inc., New York, 1981).
- 70 R. Sher, "Active Neutron Coincidence Counter for the Assay of MTR Fuel Elements," Los Alamos National Laboratory report LA-9665-MS (February 1983).
- 71 R. Tertian and F. Claisse, Principles of Quantitative X-Ray Fluorescence Analysis (Heyden & Son, Inc., Philadelphia, Pennsylvania, 1982).
- 72 R. Wellum, A. Held et al. NUSIMEP-2: an External QC Campaign for Measurements of Uranium Isotopic Ratios in Small Samples. – ESARDA, 23rd annual meeting, Bruges, Belgium, 8-10 May, 2001.
- 73 R. Sher, "Operating Characteristics of Neutron Well Coincidence Counters," Brookhaven National Laboratory report 50332 (1972).
- 74 S. L. Meyer, Data Analysis for Scientists and Engineers (John Wiley & Sons, Inc., New York, 1975), p. 37.
- 75 S. Baude and R. Chiappini Isotopic Measurements on Micrometric Particles: The French Experience to Detect Fissile Material, IAEA-SM-367/10/05.
- 76 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).
- 77 S.Vogt, P.Zahradnik, D.Klose, and H.Swietly Bulk Analysis of Environmental Swipe Samples, IAEA-SM-367/10/06.
  - 78 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).
  - 79 T. Mukoyama, "Fitting of Gaussian to Peaks by Non-Iterative Methods", Nuclear Instrument and Methods 125, 289-291 (1975).
  - 80 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.
  - 81 T.E. Sampson. Measurement Control: Principles and Practice as Applied to Nondestructive Assay. LA-12233-MS, December 1991.
  - 82 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.
  - 83 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.
  - 84 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.
  - 85 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).
  - 86 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).
  - 87 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).
  - 88 U-Pu InSpector. Методические указания. Руководство по работе с аппаратурой. УМЦУК, Обнинск, 1988 г.
  - 89 William R. Leo, Techniques for Nuclear and Particle Physics Experiments/ A How-to Approach, second revised edition, Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 1994, printed in Germany.
  - 90 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.
  - 91 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).
  - 92 А.А. Трунов. Определение выгорания топлива в тепловых и быстрых реакторах. – Атомная техника за рубежом, 1980, №6, с. 18.
  - 93 А.Б. Дорин, С.А. Чибисов, Выбор оптимальной структуры и параметров формирующих цепей спектрометрического усилителя, Вопросы атомной науки и техники, серия: Ядерное приборостроение, вып. 1-2 – М: 1990, стр. 32.
  - 94 Абрамов А.И., Казанский Ю.А., Матусевич Е.С. Основы экспериментальных методов ядерной физики. Изд-е 2-е. – М.: Атомиздат, 1977. – 528 с.
  - 95 Альфа-, бета- и гамма-спектрометрия. Под редакцией К.Зигбана. Атомиздат, Москва, 1969.
  - 96 Амиел С., Пейсаз М. Аналитическое применение задержанных нейтронов.-"Атомная энергия", 1963, т.14.
  - 97 Балдин С.А., Вартаков Н.А., Ерыхайлов Ю.В. Прикладная спектрометрия с полупроводниковыми детекторами. М.: Атомиздат, 1974г.
  - 98 Бать Г.А., Коченов А.С., Кабанов Л.П. Исследовательские ядерные реакторы: Учебное пособие для вузов. – М.: Энергоатомиздат, 1985. – 280с.
  - 99 Беляев Б.Н., Ловцюс А.В. и др. Масс-спектрометрический анализ нанограммовых количеств трансурановых элементов. – Радиохимия, 1982, №2, с.185.
  - 100 Бекурц К., Виртц К. Нейтронная физика. – М.: Атомиздат, 1968. – 295с.

- 101 Бурьян В.И. Основы теории измерений. М.: Атомиздат, 1977г.
- 102 Бушуев А.В. Применение гамма-спектрометрии в исследованиях по физике ядерных реакторов. М.: Энергоатомиздат, 1989г.
- 103 Бушуев А.В., Галков В.И. и др. Неразрушающий метод определения отношения плутоний/уран в твэлах быстрого реактора, основанный на спектрометрии рентгеновского излучения. - Атомная энергия, 1982 г, т. 52, вып. 5, с. 322.
- 104 Бушуев А.В., Зубарев В.Н. и др. Экспериментально-расчетное исследование поля энерговыделения топлива ИРТ. - Атомная энергия, 2000 г., т. 88, вып. 6, с. 426-431.
- 105 В.Г. Николаев Применение колодезного активного счетчика нейтронных совпадений АWCС для измерения массы делящихся изотопов ЯМ: лабораторный практикум. М: МИФИ, 2002.
- 106 В.Е. Левин, Л.П. Хамьянов. Измерение ядерных излучений. – М.: Атомиздат, 1969. – 223 с.
- 107 В.И. Калашникова, М.С. Козодаев. Детекторы элементарных частиц. – М.: Изд-во Наука, 1966. – 408 с.
- 108 В.К. Ляпидевский Методы детектирования излучений – М.: Энергоатомиздат, 1987.
- 109 В.Н. Кудрявцев, Ю.И. Коровин, Н.А. Шорохов. Масс-спектрометрический анализ изотопного состава в системе контроля ЯМ. – Труды трехстороннего семинара «Измерения, проверка и оценка баланса ЯМ», Обнинск, Россия, 9-13 октября 2000 г., стр. 169.
- 110 В.О. Вяземский, И.И. Ломоносов, В.А. Рузин. Сцинтилляционный метод в радиометрии. М., Госатомиздат, 1961.
- 111 Вальдсет Р. Прикладная спектрометрия рентгеновского излучения. - М.: Атомиздат, 1977.
- 112 Васильев Р.Д. Основы метрологии нейтронного излучения. – М.: Атомиздат. 1972. – 312с.
- 113 Веретенников А.И., Горбачев В.М., Предеин Б.А. Методы исследования импульсных излучений. М.: Энергоатомиздат, 1985. 113 с.
- 114 Внутрореакторная аппаратура для измерений плотности потока нейтронов в энергетических реакторах // Стандарт МЭК. Публикация 568. – 1978.
- 115 Внутрореакторная дозиметрия / Б.А Брисман, В.В. Генералов, Е.А. Крамер-Агеев, В.С. Трошин – М.: Энергоатомиздат. 1985. – 200с.
- 116 Гмурман В.Е. Теория вероятностей и математическая статистика: Учебное пособие для вузов. - М.: «Высшая школа», 1977. – 479с.
- 117 Голубев Б.П. Дозиметрия и защита от ионизирующего излучения: Учебник для вузов.- М.: Энергоатомиздат 1986.
- 118 Гордадзе Г.П. Оптимизация активационного анализа. – М.: Энергоатомиздат, 1985. – 301с.
- 119 Горшков Г.В., Зябкин В.А., Лятковская Н.М., Цветков О.С. Естественный нейтронный фон атмосферы и земной коры.
- 120 ГОСТ Р ИСО 5725-2002 Точность (правильность и прецизионность) методов и результатов измерений (1–6 части)
- 121 Григорьев В.А., Колюбин А.А., Логинов В.А. Электронные методы ядерно-физического эксперимента. – М.: Энергоатомиздат, 1988.
- 122 Группен К. Детекторы элементарных частиц: Справочное издание. Пер. с англ. – Новосибирск: Сибирский хронограф, 1999. – 408 с.
- 123 Дж. Биркс. Сцинтилляционные счетчики. М., ИЛ, 1955.
- 124 Иванов И.Н., Николаенко О.К. Активационный анализ по короткоживущим нуклидам. – М.: Энергоатомиздат, 1987 – 120с.
- 125 Импульсные ядерные реакторы РФЯЦ - ВНИИТФ / Б.Г.Леваков, А.В.Лукин, Э.П.Магда и др.; Под ред. А.В. Лукина. – Снежинск: Изд-во РФЯЦ – ВНИИТФ, 2002 – 608с.
- 126 Исследовательские импульсные реакторы // АИНФ-125 (ОБ). – М.: Атомиздат, 1972. – 254с.
- 127 Каталог приборов учета и контроля ядерных материалов /Третье издание. – Всероссийский научно исследовательский институт автоматики (ВНИИА), Брукхэвенская национальная лаборатория. Департамент энергетики США, 2009.
- 128 Климанов В.Б., Колчинский Г.А., Фрунзе В.В. Активационные измерения потоков и спектров нейтронов в ядерных реакторах. – М.: Издательство стандартов, 1974. – 215с.
- 129 Кожин А.Ф. Применение спектрометра U-PU Inspector для измерения и концентрации делящегося изотопа или изотопного состава ЯМ: лабораторный практикум. М: МИФИ, 2002.
- 130 Колеватов Ю.И. Спектрометрия нейтронов и гамма-излучения в радиационной физике. М.:

- Энергоатомиздат, 1990г.
- 131 Колесов В.Ф. Аperiodические импульсные реакторы. – Саров: Изд-во РФЯЦ-ВНИИЭФ, 1999 – 1032с.
  - 132 Котельников Р.Б. Анализ результатов наблюдений. М.: Энергоатомиздат, 1986г.
  - 133 Крамер-Агеев Е.А., Лавренчик В.Н., Самосадный В.Т., Протасов В.П. Экспериментальные методы нейтронных исследований. М.: Энергоатомиздат, 1990 г.
  - 134 Крамеров А.Я., Шевелев Я.В. Инженерные расчеты ядерных реакторов. М.: Атомиздат, 1964. С. 578 – 613.
  - 135 Кузнецов Р.А. Активационный анализ. – М.: Атомиздат, 1974. – 343с.
  - 136 Лавренчик В.Н. Постановка физического эксперимента и статистическая обработка его результатов: Учебное пособие для вузов. – М.: Энергоатомиздат. 1986. – 272с.
  - 137 Лапенас А.А. Измерение спектров нейтронов активационным методом. – Рига: ЗИНАТЕ. 1975. – 198с.
  - 138 Ломакин С.С., Петров В.И., Самойлов П.С. Радиометрия нейтронов активационным методом. – М.: Атомиздат, 1975. – 207с.
  - 139 Ломидзе В.А. Импульсные ядерные реакторы. – М.: Знание, 1982.
  - 140 Маслов И.А., Лукницкий В.А. Справочник по нейтронному активационному анализу. – Л.: Наука, 1971. – 312с.
  - 141 Методы измерений ядерных материалов: учеб.пособие для вузов / Бушуев А.В. - М. : МИФИ, 2001. - 172 с. - ISBN 5-7262-0386-0.
  - 142 Методы радиоизотопного анализа продуктов нейтронной активации и деления / Под ред. Канн. хим. наук Ф.Я. Ровинского. – М.: Атомиздат, 1973.
  - 143 Методы химического и радиохимического контроля в ядерной энергетике. Под редакцией Москвина Л.Н. М.: Энергоатомиздат, 1989г.
  - 144 Мухин К.Н. Введение в ядерную физику. – М.: Атомиздат, 1965.
  - 145 Н.Г.Волков, В.А.Христофоров, Н.П.Ушакова Методы ядерной спектрометрии. – М.; Энергоатомиздат, 1990.
  - 146 П.А.Тишкин. Экспериментальные методы ядерной физики // Часть 1 / Детекторы ядерных излучений: Учебное пособие для ВУЗов. – Ленинград.: Изд-во Ленинградского университета, 1970. – 232 с.
  - 147 Панов Е.А. Практическая гамма-спектрометрия на атомных станциях. – М.: Энергоатомиздат, 1990.– 200с.
  - 148 Полупроводниковые детекторы в экспериментальной физике./ Ю.К.Акимов, О.В.Игнатов, А.И.Калинин, В.Ф.Кушнирук. – М.: Энергоатомиздат, 1989.– 344с.
  - 149 Приборы для регистрации ядерных излучений и их применение. Под редакцией А. Снелла. М.: Атомиздат 1965 г.
  - 150 Р.С. Резников, Ю.П. Сельдяков, Промышленные полупроводниковые детекторы, М., Атомиздат, 1975.
  - 151 РД-07-16-2008 Методические указания по применению статистических методов при проведении инспекций систем учёта и контроля ядерных материалов с использованием технических средств измерений
  - 152 РМГ 61-2003 ГСИ. Показатели точности, правильности, прецизионности методик количественного химического анализа
  - 153 Роберт Маршал. Методы изготовления стандартных образцов для неразрушающего анализа материалов в оборотах и отходах. - Трехсторонний семинар по оценке содержания и наличных количеств ядерных материалов в оборотах и отходах. Обнинск, Россия, 2001 г, стр. 275.
  - 154 С. Шу, Дж. Стюарт и др. Руководство для эталонов неразрушающего анализа. Критерии подготовки, существующие эталоны и практические вопросы. LA-13340-MS, 1997 г.
  - 155 Сысоев А.А. Физика и техника масс-спектрометрических приборов и электромагнитных установок. – М.: Энергоатомиздат, 1983.
  - 156 Тельдеш Ю., Браун Т., Кириш М. Анализ методом изотопного разбавления М.: Атомиздат, 1975.
  - 157 Теория вероятностей с элементами математической статистики: Учебное пособие для вузов. - М.: «Высшая школа», 1971. – 328с.
  - 158 Томас А. Келли, Томас Е. Семпсон, Доротея Де Лэнн. PC/FRAM: Алгоритмы для измерения изотопного состава плутония с помощью гама-спектрометрии. Перевод с английского. Лос-Алосмос, Нью Мексико, 87545, США.

- 159 Томас Е. Семпсон, Томас А. Келли. Руководство пользователя PC/FRAM. - LANL-РФЯЦ ВНИИЭФ, 1998.
- 160 Федотов П.Н. Разработка неразрушающих методов анализа состава топлива ядерных реакторов. – Атомная энергия, 1999 г., т. 86, вып. 5.
- 161 Физические методы анализа следов элементов // пер. с англ. под ред. акад. И.П.Алимапина. – М: Мир, 1967. – 307с.
- 162 Фролов В.В. Ядерно-физические методы контроля делящихся веществ. – М.: Энергоатомиздат, 1989.
- 163 Х. Смит, Дж. Стюарт. Разработка эталонов для неразрушающего анализа СЯМ. - Труды конференции по учету и контролю ЯМ. Обнинск, Россия, 9-14 марта 1997 г, стр. 338.
- 164 Худсон Д. Статистика для физиков. – М.: Мир, 1967.
- 165 Ц. Вылов, Б.П. Осипенко, В.М. Чумин. Прецизионная спектрометрия излучений радиоактивных нуклидов с помощью полупроводниковых детекторов. "Физика элементарных частиц и атомного ядра", 1978, т.9, вып.6.
- 166 Экспериментальные методы и аппаратура в ядерно-физических исследованиях. М.: Энергоатомиздат, 1984г.
- 167 Ю.А. Егоров. Сцинтилляционный метод спектрометрии гамма излучения и быстрых нейтронов. М., Атомиздат, 1963.
- 168 Ю.П. Ефремов, Ф.Ф. Комаренко и др. Развитие разрушающих методов измерения в системе учета и контроля ядерных материалов. - Труды трехстороннего семинара «Измерения, проверка и оценка баланса ЯМ», Обнинск, Россия, 9-13 октября 2000 г., стр. 113.

**ПРАКТИЧЕСКИЕ И ЛАБОРАТОРНЫЕ ЗАНЯТИЯ  
ПО КУРСУ NS4  
«МЕТОДЫ И ПРИБОРЫ ДЛЯ ИЗМЕРЕНИЯ ЯДЕРНЫХ  
И ДРУГИХ РАДИОАКТИВНЫХ МАТЕРИАЛОВ»**

УЧЕБНОЕ ПОСОБИЕ

Силаев М.Е., Каратаев В.Д.

## Предисловие

Данное пособие предназначено для его использования в обучении по курсу NS4 «Методы измерения ядерных и других радиоактивных материалов» образовательной программы подготовки магистров в области физической ядерной безопасности согласно Technical Guidance IAEA Nuclear Security Series No.12. Вспомогательными материалами для обучения являются базовое учебное пособие по курсу NS4, а также перечень рекомендованной для изучения дополнительной литературы. Содержание пособия направлено на дополнение базового учебного пособия и получение обучающимися практических навыков в измерениях ионизирующего излучения. Так как пособие содержит минимальное количество теоретического материала, то помимо обеспечения задач обучения по курсу NS4, оно, а также его части, могут использоваться самостоятельно при реализации других курсов, связанных с измерениями ядерных и радиоактивных материалов.

Пособие содержит описание одного практического и трех лабораторных занятий. Лабораторные занятия в свою очередь, разбиты на лабораторные работы, внутри которых имеются отдельные задания, предназначенные для приобретения обучающимися специфических навыков измерений и обращения с оборудованием.

При подготовке материалов для практического занятия и лабораторных работ авторы старались максимально придерживаться содержания Technical Guidance IAEA Nuclear Security Series No.12. Содержание материалов универсально и позволяет использовать их применительно к любой необходимой и доступной экспериментальной базе. Поэтому в тексте пособия не содержатся технические характеристики каких-либо конкретных измерительных систем и программных продуктов, но имеются общие технические требования к организации процесса измерений, источникам ионизирующего излучения, а также принципиальные схемы измерительных систем. При этом авторы оставляют право окончательного выбора содержания работ, а также перечня используемого оборудования за пользователями пособия.



## **Е. NS4.2 ДЕМОНСТРАЦИЯ РАДИАЦИОННЫХ ДЕТЕКТОРОВ И ПРАКТИЧЕСКИЕ УПРАЖНЕНИЯ С НИМИ.**

### **Введение**

Ионизирующее излучение является неотъемлемым признаком ядерных и других радиоактивных материалов. Поэтому использование радиационных детекторов является важным элементом знаний, необходимых специалисту в области физической ядерной безопасности. Практическая область применения этих знаний связана с реализацией целого ряда задач в системе физической ядерной безопасности. В частности, процесс детектирования необходим при осуществлении таких функций, как:

- учет и контроль ядерных и радиоактивных материалов;
- противодействие хищению или незаконному перемещению ядерных и радиоактивных материалов на предприятии в целях саботажа;
- поиск и изъятие ядерных и радиоактивных материалов из незаконного оборота;
- контроль за перемещением ядерных и других радиоактивных материалов на транспорте;

– ядерные криминалистические расследования и другое.

Для понимания принципов и особенностей методов детектирования ионизирующих излучений необходимо знание основ ядерной физики и теории взаимодействия ионизирующего излучения с веществом. Изучение перечисленных теоретических разделов позволяет эффективно и грамотно использовать измерительную технику.

Экспериментальные данные, получаемые с использованием радиационных детекторов, являются основным источником информации не только в системах детектирования ядерных и радиоактивных материалов в процессе их учета, контроля и физической защиты, но также для обеспечения радиационной и ядерной безопасности.

Содержание практического занятия направлено на закрепление и расширение знаний, полученных при изучении раздела NS4.2 курса NS4 «Методы и приборы для измерения ядерных и других радиоактивных материалов».

**Целью** занятия является изучение радиационных детекторов различных типов и получение практических навыков в обращении с ними.

### **Задачи:**

- закрепление знаний об особенностях радиационных детекторов различного типа;
- классификация радиационных детекторов (систем для детектирования ионизирующего излучения);
- демонстрация радиационных детекторов и методов их использования;
- получение практических навыков в использовании радиационных детекторов.

### **Методика проведения занятия**

Занятие рассчитано на самостоятельную работу студентов и обучение в аудитории под руководством преподавателя/инструктора.

Самостоятельная работа заключается в повторении основ ядерной физики и теории взаимодействия излучения с веществом, принципов работы детекторов ионизирующего излучения, а также, при необходимости, изучении руководств по использованию радиационных измерительных приборов и систем, используемых на занятии.

Аудиторное занятие состоит из трех частей:

- обсуждение теоретических основ детектирования ионизирующего излучения, включая классификацию измерительных приборов;
- демонстрация измерительных приборов и систем с различными типами радиационных детекторов;
- получение практических навыков в измерениях и интерпретации полученных результатов.

Основная часть необходимых сведений по детекторам ионизирующих излучений имеется в учебнике по курсу NS4 «Методы и приборы для измерения ядерных и других радиоактивных

материалов». Перечень рекомендуемой дополнительной литературы приводится в конце описательной части практического занятия.

В соответствии с содержанием раздела NS4.2 курса практическое занятие рекомендуется выполнять с измерительными системами (устройствами), укомплектованными различными типами газоразрядных счетчиков, сцинтилляционным и полупроводниковым детектором. Подобные системы и устройства наиболее распространены и чаще всего используются в различных прикладных сферах, имеющих отношение к физической ядерной безопасности. В случае если возможность использования перечисленных детекторов отсутствует, занятие может быть ориентировано на использование имеющихся детекторов ионизирующего излучения.

На занятии не предполагается демонстрация систем детектирования нейтронов, так как описание таких систем не входит в раздел NS4.2. курса. Кроме того, для работы с нейтронными источниками, обычно требуются специальные лабораторные условия.

Занятие рассчитано на группу, включающую до 20 человек обучающихся.

Аудиторная продолжительность практического занятия – не более 4-х академических часов.

Самостоятельная внеаудиторная работа студентов – не менее 4-х академических часов.

#### **Теоретические основы детектирования и классификация детекторов**

Для подготовки к практическому занятию каждому из обучающихся предлагается заранее (в ходе самостоятельной работы) подготовиться к заполнению таблицы свойств детекторов разного типа (табл. 4.2.1). В начале занятия обучающиеся, под руководством преподавателя/инструктора, заполняют таблицу в ходе совместного обсуждения. При заполнении таблицы проводится обсуждение свойств детекторов.

Существует много способов классифицировать приборы и системы для радиационных измерений: по назначению, типу детекторов, виду измеряемого излучения, характеру электрических выходных сигналов детектора, преобразуемых электронной схемой и другим признакам.

По назначению все приборы и измерительные системы делятся на следующие группы: индикаторы, радиометры, рентгенометры, дозиметры, спектрометры.

Индикаторы – простейшие приборы, применяемые обычно для обнаружения ионизирующих бета- и гамма- излучений и ориентировочной оценки мощности дозы. Эти приборы имеют простейшие электрические схемы со световой и звуковой сигнализацией. При помощи индикаторов определяется, возрастает или убывает мощность дозы. Пороговые индикаторы срабатывают при превышении установленного предела по интенсивности излучения или мощности дозы. Детектором обычно служит газоразрядный счетчик Гейгера.

*Таблица 4.2.1. Свойства детекторов разного типа*

Тип детектора	Ионизационная камера	Пропорциональный счетчик	Счетчик Гейгера-Мюллера	Сцинтилляционный счетчик	Полупроводниковый счетчик
Рабочее напряжение					
Тип детектируемого излучения					
Эффективность регистрации					

Радиометры (измерители радиоактивности) применяются для обнаружения и определения степени радиоактивного загрязнения поверхностей, оборудования, объемов воздуха, главным образом альфа- и бета- частицами, а также для измерения малых уровней гамма-излучений. В радиометрах обычно используются газоразрядные, сцинтилляционные или полупроводниковые детекторы. По конструктивному оформлению радиометры разделены на три группы: носимые, переносимые и стационарные. Носимые – с автономным питанием, конструктивное оформление которых позволяет измерять радиационные характеристики во время их ношения. Переносимые – конструкция которых позволяет переносить их в выключенном состоянии, например, настольные приборы. Стационарные – конструкция которых не предусматривает возможности их переноски. Носимые радиометры состоят из детектора и измерительного пульта. Датчик-детектор включает в себя усилитель импульсов. В измерительном пульте

расположены схемы регистрации импульсов с индикатором или стрелочным прибором и блок питания, а также интенсиметр (измеритель скорости счета импульсов). При помощи интенсиметра измеряемая величина определяется непосредственно по показаниям стрелочного прибора (или другого типа отображения информации – например, гистограммы на экране дисплея прибора), фиксирующего среднюю скорость следования импульсов, что позволяет не только быстро обнаружить место радиоактивной загрязненности или увеличение уровня радиации, но и наблюдать динамику изменения радиационной обстановки. В переносимых радиометрах применяются два типа схем регистрации импульсов: схема счета импульсов и схема, измеряющая среднюю скорость следования импульсов. Наличие в составе радиометров пересчетных устройств с достаточно высокой разрешающей способностью, большим объемом счета и большей экспозицией, автоматическим режимом работы (набор заданного числа импульсов или экспозиции), а также применение датчиков с разнообразными детекторами излучений позволяет применять их для радиометрии всех видов излучений. Стационарные (переносимые) радиометры представляют собой контрольно-измерительные установки, применяемые для дистанционного контроля плотности потоков гамма- и нейтронного излучений и концентраций загрязнения воздуха бета-активными газами и бета-аэрозолями. Стационарные радиометры осуществляют непрерывный контроль с оповещением (включение предупредительной сигнализации) о превышении в местах установки датчиков предельного значения контролируемой величины. Радиометры снабжены стрелочными приборами или самопишущими потенциометрами для регистрации контролируемых величин. Датчики радиометров могут быть размещены дистанционно на расстоянии до ста метров от сигнально-измерительного пульта. В качестве детекторов гамма- и бета- излучений используются газоразрядные счетчики, для регистрации альфа-частиц – сцинтилляционные счетчики и для регистрации нейтронов – сцинтилляционные счетчики и ионизационные камеры. В радиометрах имеются схемы автоматической компенсации естественного гамма-фона, что позволяет производить измерения в условиях переменных гамма-полей.

Между дозиметрическими и радиометрическими приборами нет больших конструктивных различий. Рентгенометры представляют собой дозиметры, предназначенные для измерений мощности дозы рентгеновского и гамма-излучений в диапазоне от сотых долей рентгена до нескольких рентген в час (Р/ч). В качестве детекторов в рентгенометрах применяются ионизационные камеры или газоразрядные счетчики.

Дозиметры обычно предназначены для определения суммарной эквивалентной дозы рентгеновского и гамма-излучения. Детекторами в таких системах чаще всего служат газоразрядные и сцинтилляционные счетчики. Существуют также дозиметры, регистрирующие другие виды излучения, например, нейтронное. Все дозиметрические приборы по принципу действия разделены на дискретные (импульсные) и непрерывные (аналоговые). В первых частицы или фотоны регистрируемого излучения преобразуются детекторами в последовательные короткие импульсы электрических сигналов, то есть электрическая схема выполняет функцию преобразования и усиления сигналов. Во-вторых, детектор преобразует действующее на него излучение в непрерывный постоянный ток, а электрическая схема выполняет функцию усиления и преобразования постоянного тока. Современные дозиметрические приборы работают на основе ионизационного метода и их основными узлами являются: детекторы ионизирующих излучений (ионизационные камеры, газоразрядные счетчики или сцинтилляторы); электронные схемы преобразования импульсов; измерительные (показывающие, регистрирующие, цифропечатающие и другие) приборы, шкалы которых отградуированы непосредственно в единицах тех физических величин, для которых предназначен прибор. По конструктивному оформлению, помимо носимых, переносимых и стационарных приборов, выделяют класс индивидуальных дозиметров. Индивидуальные дозиметры предназначены для постоянного контроля индивидуальных доз персонала и могут быть рассчитаны на использование персоналом в течение смены (зарядные или разрядные детекторы), а также в течение длительного срока (ТЛД, фотопленки и другие).

Спектрометрические системы относятся к наиболее сложному классу приборов, регистрирующих ионизирующее излучение. Основной особенностью приборов является то, что регистрируемый сигнал пропорционален энергии излучения. Поэтому в спектрометрических системах могут использоваться только пропорциональные газовые счетчики,

сцинтилляционные (неорганические) и полупроводниковые детекторы. Помимо характеристик излучения, таких как интенсивность и мощность дозы, спектрометры позволяют идентифицировать радионуклидный состав и определять активность излучателей. Современные спектрометры, также как и другие системы для радиационного контроля, могут быть носимыми, переносными и стационарными.

Обобщенная информация по измерительным приборам и их назначению приведена в табл. 4.2.2.

Таблица 4.2.2. Обобщенная информация по измерительным приборам и их назначению

Тип прибора	Назначение	Тип используемого в приборе детектора
Индикатор	для обнаружения ионизирующего бета- и гамма- излучений, а также ориентировочной оценки мощности дозы, или превышения заранее установленного порогового уровня излучения	газовые счетчики (чаще всего счетчики Гейгера-Мюллера), сцинтилляционные детекторы
Радиометр	для обнаружения и интенсивности или потока излучения определенного типа (альфа-, бета-, гамма-, нейтронов) в целях определения степени радиоактивного загрязнения поверхностей и объемов газов; определение активности после радиохимического выделения радиоизотопа	газовые счетчики, сцинтилляционные и полупроводниковые детекторы, трековые детекторы и системы
Рентгенометр	предназначенные для измерений мощности дозы рентгеновского и гамма-излучений в единицах системы СГС	газовые счетчики (чаще всего счетчики Гейгера-Мюллера), сцинтилляционные детекторы
Дозиметр	определения суммарной эквивалентной дозы рентгеновского и гамма-излучения (нейтронов)	газовые счетчики, сцинтилляционные и полупроводниковые детекторы, детекторы других типов (зарядные, разрядные, ТЛД, химические и другие)
Спектрометр	определение интенсивности и потока излучения, степени загрязнения поверхностей и объемов, радионуклидного состава излучателей, активности и массы радиоизотопов	пропорциональные счетчики, сцинтилляционные (неорганические) и полупроводниковые детекторы

#### Требования к приборам и оборудованию, используемым для демонстрации

Для демонстрации могут использоваться любые доступные приборы и измерительные системы с детекторами различных типов. Демонстрация может быть эффективно выполнена с помощью одной из универсальных измерительных систем с набором детекторов, предназначенных для измерения альфа-, бета- и гамма- излучения (иногда такие системы имеют также возможность измерения нейтронов).

Измерения рекомендуется выполнять с помощью набора источников альфа-, бета- и гамма-излучения закрытого типа небольшой активности (не более  $10^5$  Бк). При отсутствии возможности в использовании источников излучения, измерения могут выполняться с материалами, имеющими различный уровень естественной радиоактивности (гранит, пластик, керамика и другие).

Все работы с источниками должны выполняться только преподавателем/инструктором.

Занятия, связанные с обращением с радиоактивными материалами, каковыми являются закрытые источники ионизирующего излучения, должны проводиться в соответствии с действующими нормами и правилами безопасности. Персонал, работающий с источниками, должен иметь соответствующий допуск к выполнению работ и не иметь медицинских противопоказаний. Персонал должен обладать необходимой квалификацией, навыками и регулярно аттестоваться компетентной комиссией. При необходимости, для выполнения работы должны использоваться доступные средства защиты от ионизирующего излучения.

Так как обучающиеся не выполняют самостоятельно работ, связанных с источниками ионизирующего излучения, то специальные требования по их подготовке в области радиационной безопасности для участия в занятии не предъявляются.

### **Демонстрация измерительных приборов и систем**

#### *Газонаполненные счетчики*

В качестве универсального примера газонаполненного детектора рекомендуется использовать несамогасящийся счетчик Гейгера-Мюллера в составе системы с регулируемым напряжением и источником гамма-излучения. Для такой системы может быть наглядно получена вольтамперная характеристика, отражающая рабочие режимы всех газонаполненных счетчиков. В случае, если подобного детектора нет в наличии, задачи демонстрации рабочих режимов могут быть выполнены с помощью набора различных газонаполненных детекторов состоящего из ионизационной камеры, пропорционального счетчика и самогасящегося счетчика Гейгера-Мюллера. После получения вольтамперных характеристик детекторов необходимо обсудить с группой обучающихся полученные результаты.

В случае, если отсутствует возможность использования описанной измерительной системы с регулируемым источником напряжения и счетчиком Гейгера-Мюллера, для демонстрации можно использовать любые другие системы или приборы на основе газонаполненных детекторов. Свойства детекторов должны обсуждаться с обучающимися.

Газонаполненные детекторы могут использоваться для регистрации всех видов ионизирующего излучения. В ходе занятия рекомендуется продемонстрировать эти возможности с описанием того, какой тип газонаполненного детектора был использован и почему, а также обсуждением особенностей детекторов и результатов измерений.

В ходе занятия рекомендуется продемонстрировать приборы, являющиеся радиоактивными индикаторами, с демонстрацией того, каким образом пороговый уровень индикатора может быть настроен.

#### *Сцинтилляционные детекторы*

Демонстрация сцинтилляционных детекторов может быть выполнена с помощью любой доступной измерительной системы или прибора. Сцинтилляционные детекторы могут использоваться для регистрации всех видов ионизирующего излучения. В ходе занятия рекомендуется продемонстрировать эти возможности с описанием конструктивных особенностей и того, какой тип сцинтилляционного детектора был использован и почему.

С помощью сцинтилляционного детектора могут быть продемонстрированы возможности гамма- и бета- спектрометрии.

#### *Полупроводниковые детекторы*

Демонстрация полупроводниковых детекторов может быть выполнена с помощью любой доступной измерительной системы или прибора. Полупроводниковые детекторы чаще всего используются для регистрации гамма- и альфа- излучения. В ходе занятия рекомендуется продемонстрировать эти возможности с описанием того, какой тип полупроводникового детектора был использован и почему.

Полупроводниковые детекторы обычно применяются в спектрометрических системах. Возможности гамма- и альфа- спектрометрии могут быть продемонстрированы в ходе занятия с помощью полупроводниковых спектрометрических систем.

#### *Дозиметры*

Приборы-дозиметры, используемые на занятии, могут быть укомплектованы различными типами детекторов.

На занятии проводится обсуждение понятия дозы облучения, демонстрируются измерения фоновых значений мощности дозы (экспозиционной или эквивалентной). Проводится обсуждение результатов измерений. После обсуждения результатов измерения проводится обсуждение факторов, влияющих на величину мощности дозы.

### **Практические упражнения с детекторами излучений**

Заключительная часть занятия предназначена для получения практических навыков по обращению с различными радиационными приборами. Для получения практических навыков используются только наиболее простые приборы и системы: индикаторы, радиометры и

дозиметры. Инструкции по эксплуатации приборов должны быть освоены обучающимися заранее, в ходе самостоятельной работы.

Преподаватель/инструктор делит обучающихся на несколько групп. Каждой из групп поручается, под руководством преподавателя и его ассистентов, освоить один из простых радиометрических или дозиметрических приборов, ранее продемонстрированных на занятии. После получения первичных навыков работы с одним из приборов, группы обучающихся меняются рабочими местами и изучают другие приборы, использованные на занятии.

Результаты работы в группах оцениваются преподавателем/инструктором.

#### **Контрольные вопросы и задания.**

1. Какие типы газонаполненных детекторов вы знаете?
2. Нарисуйте схему и опишите принцип действия газонаполненного детектора?
3. Какие типы сцинтилляционных детекторов вам известны?
4. Нарисуйте схему и опишите принцип действия измерительной системы с кристаллическим сцинтилляционным детектором?
5. Какую величину называют поглощенной дозой? Назовите и сравните системные и внесистемные единицы измерения поглощенной дозы.
6. Какую величину называют эквивалентной дозой? Назовите и сравните системные и внесистемные единицы измерения эквивалентной дозы.
7. Перечислите значения взвешивающих коэффициентов для всех видов излучения в соответствии с действующими правилами?
8. Какую величину называют экспозиционной дозой? Назовите и сравните системные и внесистемные единицы измерения экспозиционной дозы.
9. Какая связь существует между экспозиционной и поглощенной дозой?
10. Объясните принцип действия полупроводникового детектора?
11. Перечислите требования к полупроводниковому детектору?
12. Что такое эффективность регистрации излучения детектором и чем она отличается от эффективности регистрации излучения измерительной системой?
13. Какие временные характеристики сигнала детектора вы знаете?
14. Что понимают под «принципом нормирования» в радиационной безопасности?
15. Что понимают под «принципом обоснования» в радиационной безопасности?
16. Что понимают под «принципом оптимизации» (ALARA) в радиационной безопасности?
17. Приведите классификацию приборов и систем для радиационных измерений по их назначению.

#### **Перечень дополнительных информационных источников**

1. Каталог приборов учета и контроля ядерных материалов /Третье издание. – Всероссийский научно исследовательский институт автоматики (ВНИИА), Брукхэвенская национальная лаборатория. Департамент энергетики США, 2009.
2. INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, Safeguard Techniques and Equipment, International Nuclear Verification Series No1 (revised). Vienna. 2003 Edition. p. 92.
3. <http://www.canberra.com/products/>;
4. <http://www.ortec-online.com/Solutions/view-by-type-and-alphabetically.aspx>;
5. <http://www.doza.ru/catalog/>;
6. <http://aspect.dubna.ru/new/index.php>;
7. <http://www.greenstar.ru/devices.html>;
8. Голубев Б.П. Дозиметрия и защита от ионизирующего излучения: Учебник для вузов.– М.: Энергоатомиздат, 1986;
9. Physics and Engineering of Radiation Detection. Syed Naeem Ahmed, Queen’s University, Kingston, Ontario. Academic Press Inc. Published by Elsevier, 2007.
10. В.К. Ляпидевский Методы детектирования излучений – М.: Энергоатомиздат, 1987.
11. Абрамов А.И., Казанский Ю.А., Матусевич Е.С. Основы экспериментальных методов ядерной физики. Изд-е 2-е. – М.: Атомиздат, 1977.

## Ф. ЛАБОРАТОРНЫЕ РАБОТЫ

### Общие требования к выполнению лабораторных работ

#### *Радиационная безопасность*

Лабораторные работы связаны с обращением с радиоактивными материалами и поэтому должны выполняться в соответствии с действующими нормами и правилами безопасности всех уровней, а также проводиться в специализированных лабораторных помещениях, учитывающих требования по защите от ионизирующего излучения. Все работы по обращению с источниками ионизирующего излучения должны выполняться только квалифицированным персоналом. Персонал, выполняющий лабораторные работы с обучаемыми, должен иметь соответствующий допуск для работы с радиоактивными источниками и не иметь медицинских противопоказаний. Персонал должен обладать необходимой квалификацией, навыками и регулярно аттестоваться на получение допуска к работе с источниками ионизирующего излучения компетентной комиссией. При выполнении работы должны использоваться необходимые и доступные средства защиты от ионизирующего излучения.

Перед проведением работ обучающиеся должны сдать экзамен по технике безопасности и быть проинструктированы по правилам поведения в лаборатории и на рабочем месте.

#### *Требования к содержанию отчета о выполнении работы*

Отчет о выполнении лабораторной работы должен содержать:

- краткое описание используемого метода исследований;
- описание и основные технические характеристики используемого оборудования;
- описание хода выполнения работ с заполнением таблиц и построением необходимых графиков;
- результаты расчета требуемых величин и параметров;
- при наличии возможности использования программного обеспечения и печатной техники, результаты измерений и анализов должны распечатываться и прилагаться к отчету;
- выводы о результатах проделанной работы.

## NS4.3-NS4.4 ИЗМЕРЕНИЯ АЛЬФА, БЕТА, ГАММА И НЕЙТРОННЫХ ИСТОЧНИКОВ

### Введение

При работе с ядерными и радиоактивными источниками существует целый ряд задач, основными из которых обычно являются определение изотопного состава и активности излучателей.

Для определения изотопного состава излучателя обычно требуются спектрометрические методы, которые сравнительно сложны. Для их изучения и корректного применения требуется специфическая и сложная аппаратура, специализированное программное обеспечение, а значит специальная теоретическая и практическая подготовка оператора. С другой стороны, если изотопный состав излучателей источника известен, то для определения их активности часто бывает достаточным использовать дозиметрические или радиометрические устройства. Такие приборы обычно просты в применении и не требуют высокой квалификации при обращении с ними.

Радиометрические устройства обычно имеют более высокий класс точности измерений. Они используются для определения плотности потоков излучения того или иного типа (альфа-, бета-, гамма- или нейтронного). Наличие фильтров из различных материалов разнообразной толщины позволяет судить о проникающей способности излучения, а также выполнять функцию выделения излучения какого-либо одного типа или с энергией выше заданного порогового значения из смешанного потока. В случае измерения нейтронов, помимо фильтров, в измерительных системах используются вещества – замедлители.

**Целью лабораторной работы** является изучение методов измерений альфа-, бета-, гамма- и нейтронного излучений с помощью радиометрических приборов.

Основными **задачами работы** являются:



– закрепление теоретических знаний в области измерения ионизирующего излучения, изложенных в разделах 4.3 и 4.4 курса NS4 Методы и приборы для измерения ядерных и других радиоактивных материалов IAEA Nuclear Security Series No.12;

– приобретение навыков практической работы с радиометрической аппаратурой для измерений альфа-, бета-, гамма- и нейтронного излучений;

– изучение метода определения активности неизвестного образца по результатам его сравнительных измерений с активностью образцового источника.

Для занятия в лаборатории создаются подгруппы студентов не более 3–4 человека, выполняющих работу совместно.

Лабораторные занятия проводятся в три этапа – подготовительный, основной и защита. Подготовительный этап представляет собой самостоятельную работу студентов по изучению теоретического материала и ознакомлению с инструкциями по эксплуатации оборудования. Длительность подготовительного этапа составляет от 4 до 8-ми часов и может варьироваться в зависимости от сложности используемого оборудования, а также степени теоретической подготовленности обучающихся.

Основной этап проводится в лаборатории и включает практическую работу студентов с доступным радиометрическим оборудованием под руководством преподавателя или инструктора. Длительность основного этапа составляет от шести до десяти часов аудиторных занятий в зависимости от содержания выполняемых работ, сложности используемого оборудования и степени подготовленности обучающихся.

Защита предваряется самостоятельной работой студентов, связанной с обработкой полученных экспериментальных данных, а также подготовкой ответов на контрольные вопросы и задания. Длительность самостоятельной работы составляет 8–10 часов. Защита отдельной группы обучающихся проводится преподавателем и занимает не более 2-х часов аудиторного времени.

Содержание лабораторной работы разбито на четыре части в соответствии с типом измеряемого ионизирующего излучения. Каждая часть является логически завершенной и может выполняться отдельно от других.

Для обработки результатов измерений и расчета погрешностей при выполнении заданий различных частей лабораторной работы могут использоваться стандартные статистические методы.

### **Часть 1. NS4.3.1. Измерение альфа-источников**

#### *Краткие теоретические сведения*

Тяжелые атомные ядра с зарядом  $Z > 83$  динамически нестабильны относительно альфа-распада. В таких ядрах энергетически возможно спонтанное испускание альфа- частиц (ядер атомов химического элемента гелия), состоящих из двух нейтронов и двух протонов с полной энергией связи  $\epsilon = 28$  МэВ. Исходное распадающееся ядро в этом процессе называют материнским и его массу обозначают  ${}^A_Z M$ , а новое рожденное ядро называют дочерним –  ${}^{A-4}_{Z-2} M$ . Энергетическое условие спонтанного альфа-распада может быть записано с помощью выражения:

$${}^A_Z M > {}^{A-4}_{Z-2} M + m_\alpha. \quad (\text{л.ф.4.1})$$

Известно около 150 альфа-радиоактивных ядер, значительная часть которых – изотопы, полученные искусственным путем. В естественных условиях существует 30 альфа-радиоактивных ядер в трех цепочках радиоактивных изотопов, образующих радиоактивные семейства: семейство  ${}^{238}_{92}U$  (урановый ряд); семейство  ${}^{235}_{92}U$  (актиниевый ряд);  ${}^{232}_{90}Th$  (ториевый ряд). Названные ряды после серии последовательных альфа- и бета- распадов заканчиваются стабильными изотопами свинца, соответственно:  ${}^{206}_{82}Pb$ ,  ${}^{207}_{82}Pb$  и  ${}^{208}_{82}Pb$ . На ранних стадиях существования планеты было и четвертое радиоактивное семейство - ряд нептуния, родоначальником которого является изотоп  ${}^{237}_{93}Np$ , а конечный изотоп ряда,



стабильный висмут  $^{209}_{83}\text{Bi}$ . Радионуклиды ряда нептуния имеют сравнительно небольшой период полураспада и поэтому их абсолютное большинство претерпело превращения за исторический срок существования Земли. Поэтому в естественных условиях ряд нептуния представлен только стабильным изотопом висмута.

Благодаря малой массе альфа-частицы по сравнению с массой дочернего ядра, основная часть энергии, выделяющейся при распаде материнского ядра, уносится альфа-частицей. Поскольку при распаде образуются только две частицы (с энергией, распределенной между ними в соответствии с законами сохранения энергии и импульса), то для определенного распадающегося изотопа кинетическая энергия вылетающих альфа-частиц строго постоянна, альфа-частицы моноэнергетичны, а спектр их энергий линейчатый. Однако, во многих случаях распад идет не только на основной, но и на возбужденные уровни дочернего ядра. В двух известных случаях – при распадах изотопов полония  $^{212}_{84}\text{Po}$  и  $^{214}_{84}\text{Po}$  из возбужденных состояний, которые образуются при бета-распаде изотопов висмута – испускаются так называемые длиннопробежные альфа-частицы, обладающие большей энергией, чем основная группа.

Важное свойство альфа-распада заключается в том, что периоды полураспада меняются в больших пределах, хотя энергии всех испускаемых альфа-частиц лежат в сравнительно узком интервале приблизительно от 4 до 9 МэВ. Например, для ядра  $^{213}_{84}\text{Po}$ , испускающего альфа-частицы с энергией  $E_\alpha = 8,336$  МэВ, период полураспада  $T_{1/2} = 4,2 \cdot 10^{-6} \text{ с} = 1,33 \cdot 10^{-12}$  лет, а для самого долгоживущего родоначальника ториевого семейства  $^{232}_{90}\text{Th}$  с  $E_\alpha = 3,98$  МэВ  $T_{1/2} = 4,4 \cdot 10^{17} \text{ с} = 1,38 \cdot 10^{10}$  лет. Как показали Гейгер и Неттол в 1911 году, большим вероятностям распада  $\lambda$  соответствуют и большие энергии. Зависимость  $\lg \lambda$  от  $\lg E_\alpha$  представляет собой уравнение прямой линии, а закон Гейгера–Неттола может быть записан в виде:

$$\lg \lambda = a \lg E_\alpha + b, \quad (\text{л.ф.4.2})$$

где  $a$  и  $b$  – константы, характеризующие соответствующее радиоактивное семейство,  $\lambda = \frac{\ln(2)}{T_{1/2}}$  – постоянная распада радиоактивного изотопа.

Большинство ядерных материалов, в том числе используемых в ядерной энергетике, являются альфа-излучающими радионуклидами. Поэтому приобретение практических навыков в области изучения процессов и измерения характеристик альфа-источников, является необходимым для специалистов в области контроля за ядерными материалами.

**Цель выполнения части 1 лабораторной работы** – приобретение навыков работы в области измерения альфа-источников.

**Задания:** работа предполагает выполнение двух не связанных друг с другом заданий. Задания могут выполняться в любой последовательности. При необходимости, например, в случае недостаточного приборного оснащения, может быть выполнено одно из двух заданий, а также проведена замена заданий на другие, связанные с радиометрией альфа-излучения и/или определением характеристик альфа-источников.

Задание 1: определение характеристик прохождения альфа-частиц через слой воздуха при нормальных условиях.

Задание 2: определение активности альфа-источников путем сравнения с активностью образцового альфа-источника, имеющего идентичный изотопный состав.

#### **Требования к оборудованию**

Для измерений могут использоваться любые альфа-радиометрические устройства и системы как стационарного, так и переносного типа, а также альфа-спектрометры.

В качестве детектора могут быть использованы, в зависимости от поставленной задачи, импульсные ионизационные камеры, торцовые самогасящиеся счетчики Гейгера-Мюллера с тонким окном, кремниевые полупроводниковые поверхностно-барьерные детекторы,

сцинтилляционные счетчики на основе мелкокристаллического сернистого цинка или нафталина, трековые детекторы и прочее.

Регистрирующее устройство может обеспечивать не только фиксирование количества электрических сигналов, поступающих от детектора, но и выполнять другие важные измерительные функции, например, измерение амплитуды напряжения или тока, измерение дифференциальных или интегральных спектральных распределений сигналов. Простейшим регистрирующим устройством радиометра может служить электронное пересчетное устройство, снабженное таймером для задания экспозиции измерения, как по времени, так и по количеству импульсов. Регистрирующее устройство может быть оснащено памятью, для хранения информации. Современные интеллектуальные регистрирующие устройства интегрируются в компьютерные управляющие системы со специальным программным обеспечением. Такие системы позволяют осуществлять не только сбор информации, ее анализ и хранение, но и управление регистрирующей системой.

Источник излучения на время его измерения желательно располагать в защите, или, при необходимости, экранировать каким-либо материалом достаточной толщины (для этого пригоден любой доступный материал, так как пробег альфа-частиц в твердых веществах исчисляется микрометрами). Обычно защита выполняется в виде камеры, внутри которой располагается устройство, с помощью которого можно выбрать расстояние между источником и детектором. В некоторых случаях (в частности, для проведения спектрометрических измерений) камера делается герметичной, а ее внутренняя полость может вакуумироваться.

#### **Объект исследования**

В качестве источника альфа-частиц могут использоваться стандартные плоские образцовые источники, изготовленные промышленными методами на основе альфа-излучающих радиоактивных материалов ( ${}^{226}_{88}\text{Ra}$ ,  ${}^{239}_{94}\text{Pu}$ ,  ${}^{238}_{94}\text{Pu}$  и другие), наносимых, обычно, на металлические подложки, либо лабораторные образцы, изготовленные каким-либо известным и доступным методом (например, путем электрохимического осаждения на проводящую подложку).

**Описание задания 1.** Определение характеристик прохождения альфа-частиц через слой воздуха при нормальных условиях

Проходя через вещество альфа-частицы тормозятся, теряя кинетическую энергию в неупругих столкновениях с атомами вещества и в упругих столкновениях с ядрами атомов. Увеличивая толщину слоя вещества на пути альфа-частиц от источника до детектора, измеряют зависимость количества зарегистрированных частиц от толщины слоя. Потеряв энергию на ионизацию и возбуждение атомов среды, частица останавливается (термализуется) на некоторой глубине. При этом ее кинетическая энергия составляет  $E \sim kT^0$ , где  $k$  – постоянная Больцмана,  $T^0$  – температура вещества. Расстояние, пройденное частицей в веществе до остановки, обозначается буквой  $R$ .

В инженерных расчетах чаще используют экстраполированный пробег  $R_s$ , который определяют с помощью эмпирических формул, полученных при обработке экспериментальных данных о прохождении альфа-частиц через вещество (кривой прохождения). Под кривой прохождения понимают зависимость числа частиц  $N(x)$ , прошедших слой вещества толщиной  $x$  за время измерения  $t$  и зарегистрированных детектором, от толщины этого слоя. Типичный вид кривой прохождения альфа-частиц представлен на рис. л.р.4.1.

На основании приведенных на рисунке данных следует, что экстраполированный пробег определяет минимальную толщину вещества, при которой происходит практически полное поглощение частиц. Величина экстраполированного пробега зависит от типа частицы, ее энергии и вещества поглотителя. Путем обработки кривых прохождения, измеренных для частиц с разной энергией в разных веществах, получены эмпирические формулы для экстраполированных пробегов. Одна из них, для расчета пробега альфа-частиц с энергией от 4 до 7 МэВ в воздухе, приведена ниже.

$$R_s = 0,318 \cdot E_\alpha^{3/2}, \text{ см}, \quad (\text{л.ф.4.3})$$

где  $E_\alpha$  – энергия альфа-частицы [МэВ].

При известном значении  $R_s$  формула (л.ф.4.3) может быть использована для определения энергии альфа-частиц.

В настоящей работе для определения энергии альфа-частиц строится кривая прохождения альфа-частиц через слой воздуха. Кривая может быть построена на основании определения количества импульсов за заданный промежуток времени при различном удалении источника от детектора, либо путем определения скорости счета (многие приборы определяют поток излучения через поверхность детектора). По результатам построения графически или аналитически (с помощью построения на бумаге или с помощью доступного редактора графической обработки данных со встроенными математическими функциями, например, Microsoft Excel) находят значение  $R_s$ . Затем, с помощью формулы (л.ф.4.3), вычисляют энергию альфа-частицы  $E_\alpha$  (в случае монохроматического альфа-источника) или максимальную энергию альфа-частиц в потоке излучения (для потока альфа-частиц различных энергий).

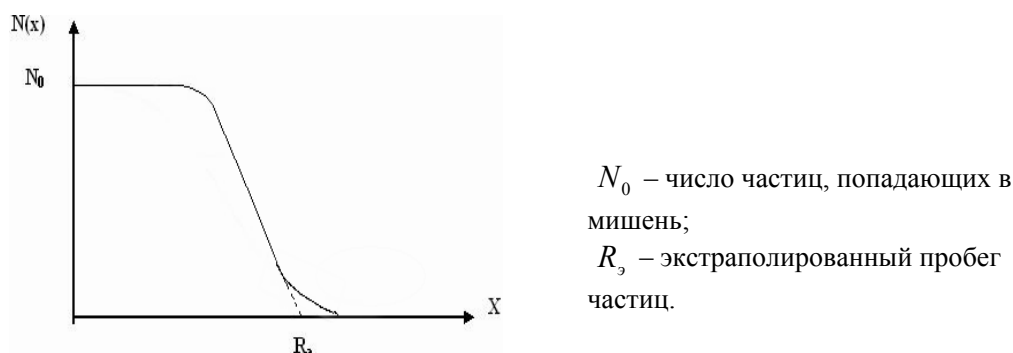


Рис. л.р.4.1 Типичный вид кривой прохождения для тяжелых заряженных частиц

Толщина поглощающего слоя регулируется путем изменения расстояния между источником и детектором. Примерная схема установки для определения пробега альфа-частиц приведена на рис. л.р.4.2.

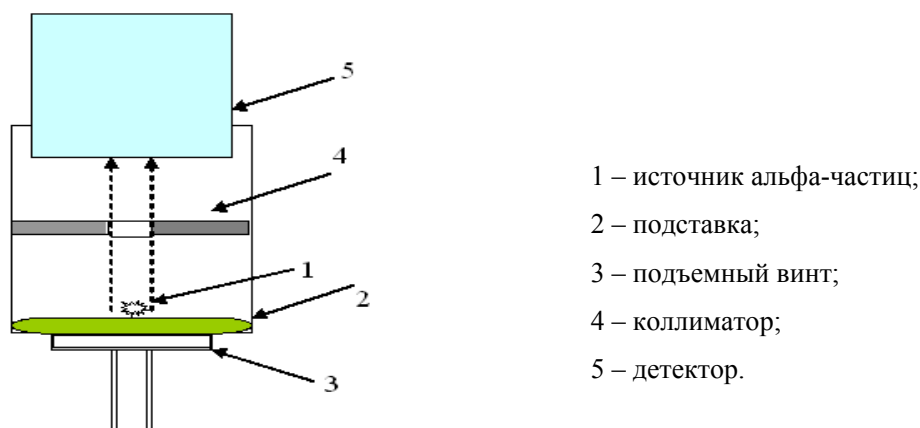


Рис. л.р.4.2. Примерная схема установки для определения пробега альфа-частиц в воздухе

Согласно предложенной схеме исследуемый источник 1 помещается на подставку 2, которая с помощью винта 3 может перемещаться в вертикальном направлении.

### ПОРЯДОК ВЫПОЛНЕНИЯ ЗАДАНИЯ

1. В соответствии с руководством по эксплуатации, подключить установку или используемую измерительную систему к источнику электрического питания. Поднять

напряжение и прогреть установку в рабочем режиме в течение рекомендованного промежутка времени.

2. Произвести с помощью преподавателя/инструктора выбор диапазона расстояний между детектором и альфа-источником, шага изменения расстояния между ними и времени счета.

Нижний предел расстояния (наименьшее значение) между источником и детектором может ограничиваться техническими параметрами используемого для его задания устройства, а также загруженностью измерительного тракта. В частности, не рекомендуется выполнять измерения при длительности “мертвого” времени радиометра, превышающего 20 % от реального времени измерения. Верхний предел расстояния (наибольшее значение) определяется удалением источника от детектора на дистанцию, при которой происходит полное поглощение альфа-частиц и детектор регистрирует фоновое значение счета импульсов (скорости счета или потока).

Шаг измерений может ограничиваться техническими параметрами используемого для его задания устройства, а также временем проведения лабораторного занятия или требуемой точностью эксперимента. Обычно шаг изменения расстояния выбирается одной величины для всего диапазона изменения расстояния между детектором и источником. Однако он может быть неравномерным, если преподаватель/инструктор укажет на необходимость более детального изучения какого-либо диапазона измерений.

Время измерения может быть жестко установлено внутренними настройками прибора или выбрано экспериментально. В последнем случае оно устанавливается путем подбора, в соответствии с требуемым значением статистической погрешности, и поэтому зависит от активности источника и его удаления от детектора. Статистическая погрешность измерений, в среднем, не должна превышать 10 % (на удаленных точках она может быть выше), что является вполне достаточным для лабораторных исследований.

3. Выполнить определение значения фонового счета за выбранное время измерений (скорости счет, потока излучения) с помощью пяти последовательных измерений. Определить среднее значение фонового счета и принять его в качестве истинного. Так как в задании определяется экстраполированная длина пробега вместо истинной, что само по себе является серьезным методическим приближением, то погрешность счета может не устанавливаться.

Результаты измерений занести в табл. 4.1.

*Таблица 4.1 Результаты измерения счета фоновых импульсов*

Количество импульсов (скорость счета, плотность потока)					
В отдельных измерениях					
Среднее значение					

*Таблица 4.2 Результаты измерения счета импульсов от источника альфа-излучения*

Расстояние между источником и детектором, мм																				
Значение счета в отдельных измерениях																				
Значение счета с учетом поправки на расстояние и счета фона																				
Среднее значение счета с учетом поправок																				

1. Выполнить измерения источника альфа-излучения в выбранном диапазоне расстояний между источником и детектором, с заданным шагом и временем измерения. В каждой точке измерений провести не менее пяти последовательных определений. Вычислить поправку в определении счета на расстояние, считая источник излучения точечным. Вычислить средние значения счета с учетом поправки и счета фона. Полученные результаты занести в табл. 4.2.
2. Построить от руки или с помощью графического редактора кривую прохождения альфа-частиц. Провести касательную к убывающей части кривой прохождения и определить  $R_\alpha$  в точке ее пересечения с осью абсцисс.
3. Вычислить значение энергии альфа-частиц  $E_\alpha$  с помощью формулы (л.ф.4.3). Сравнить полученное значение с данными об источнике излучения.
4. Обсудить результаты анализов с преподавателем/инструктором. При необходимости уточнить результат анализов, выполнить дополнительные измерения и расчеты.

**Описание задания 2.** Определение активности альфа-источников путем сравнения с активностью образцового альфа-источника, имеющего идентичный изотопный состав.

Определение активности альфа-источников одинакового изотопного состава может быть выполнено на основе сравнительных измерений. Сущность данного метода заключается в том, что при одинаковом радионуклидном составе и заданных (одинаковых) условиях измерений счет от источников излучения разной активности будет прямо пропорционален их активности:

$$\frac{N_1}{N_2} = \frac{A_1}{A_2}, \quad (\text{л.ф.4.4})$$

где  $N_1, N_2$  – счет (скорость счета) в заданных условиях измерений;

$A_1, A_2$  – значения активности источников.

Согласно уравнению (л.ф.4.4), для реализации сравнительного метода измерений необходимо иметь, как минимум, два аналогичных по геометрии, а также другим физическим и химическим параметрам источника излучения одинакового изотопного состава. Кроме того, для одного из этих источников значение активности должно быть известно (являться паспортной характеристикой или быть предварительно установлено с помощью какого-либо доступного метода). Погрешность определения при этом будет зависеть от погрешности известной активности, а также погрешностей измерений счета обоих источников. Результирующая погрешность определения активности может быть рассчитана как погрешность косвенного анализа.

Сравнительный метод является более точным, когда в распоряжении экспериментатора находится не один, а несколько источников излучения известной активности. В этом случае может быть построена калибровочная прямая, связывающая счет в заданных условиях измерений и активность источников. Калибровочная прямая строится на основании результатов измерений всех доступных источников излучения с известной активностью. Полученные экспериментальные данные аппроксимируются с помощью доступного и надежного метода (например, метода наименьших квадратов). Значение активности неизвестного источника будет определяться по его положению на этой прямой, а погрешность измерений – погрешностью линейной аппроксимации.

### ПОРЯДОК ВЫПОЛНЕНИЯ ЗАДАНИЯ

1. В соответствии с руководством по эксплуатации подключить установку или используемую измерительную систему к источнику электрического питания. Прогреть установку в рабочем режиме в течение рекомендованного промежутка времени.

2. Произвести с помощью преподавателя (инструктора) выбор условий измерения источников альфа-излучения: расстояние между источником и детектором, длительность измерений.

Расстояние между источниками излучения и детектором и время измерения выбираются исходя из двух условий:

- статистическая погрешность измерений счета от наименее активного источника из измеряемых не должна превышать 10%.

— загрузка измерительного тракта от наиболее активного источника альфа-излучения не должна превышать 20% по «мертвому» времени.

Перемещение источника относительно детектора может осуществляться по схеме, показанной на рис. л.р.4.2.

3. Выполнить определение значения фонового счета за выбранное время измерений (скорости счета, потока излучения) с помощью пяти последовательных измерений. Определить среднее значение фонового счета и принять его в качестве истинного. Результаты измерений занести в табл. 4.3. При необходимости определить погрешность определения счета фоновых импульсов.

*Таблица 4.3 Результаты измерения счета фоновых импульсов*

Количество импульсов (скорость счета, плотность потока)					
В отдельных измерениях					
Среднее значение					

4. Выполнить измерения источников альфа-излучения известной и неизвестной активности. Для каждого источника сделать не менее пяти измерений в выбранных условиях. Вычислить средние значения счета с учетом поправки на счет фона. Полученные результаты занести в табл. 4.4. При необходимости определить погрешность определения счета импульсов от источников альфа-излучения.

*Таблица 4.4 Результаты измерения счета импульсов от источника альфа-излучения*

Активность источника излучения, Бк. (для источника неизвестной активности не проставляется)															
Значение счета в отдельных измерениях															
Значение счета с учетом поправки на фон															
Среднее значение счета с учетом фона															

5. Рассчитать неизвестную активность источника с помощью формулы (л.ф.4.4) или путем построения калибровочной прямой. При необходимости вычислить погрешность определения активности, как результата косвенных измерений.

6. Обсудить результаты анализов с преподавателем/инструктором. При необходимости уточнить результат анализов, выполнить дополнительные измерения и расчеты.

7. Подготовить отчет о проделанной работе.

#### **Контрольные вопросы и задания.**

1. Какие частицы относятся к классу тяжелых заряженных частиц (ТЗЧ)?
2. Какие виды взаимодействия испытывают ТЗЧ, проходя через вещество?
3. Какой спектр имеют альфа-частицы, испускаемые радиоактивными ядрами? Объяснить вид спектра, используя законы сохранения энергии и импульса.
4. Какие процессы взаимодействия ТЗЧ с веществом приводят к уменьшению их кинетической энергии? Что происходит при этом с атомами вещества?
5. Дать определение и привести размерность массовых единиц измерения толщины вещества?
6. Какую функциональную зависимость называют кривой прохождения?
7. Какую величину называют пробегом ТЗЧ? Экстраполированным пробегом? Как находят эти величины?

8. Пояснить, как определяется энергия альфа-частицы по величине экстраполированного пробега.

9. Вычислить энергию, выделяемую при альфа-распаде изотопа  ${}^{212}_{83}\text{Bi}$  в основное состояние ядра изотопа  ${}^{208}_{81}\text{Pb}$ , если ее кинетическая энергия равна 6,086 МэВ.

10. Сколько альфа-частиц в одну секунду испускает 1 г. препарата  ${}^{238}_{92}\text{U}$ , если его период полураспада равен  $4,5 \cdot 10^9$  лет?

11. Сколько альфа-частиц в одну секунду испускает радиоактивный газ  ${}^{222}_{86}\text{Rn}$ , объемом 1 см<sup>3</sup> при нормальных условиях ( $T_{1/2}({}^{222}_{86}\text{Rn}) = 3,8$  сут.).

12. Вычислить в единицах  $\beta = v/c$  скорость  $\alpha$ - частицы, если она движется с кинетической энергией 10 МэВ.

### Часть 2. NS4.3.2. Измерение бета-источников

#### Краткие теоретические сведения

Бета-частицы относятся к классу легких заряженных частиц. Это класс частиц, которые не участвуют в сильных взаимодействиях: электроны ( $e^-$ ), позитроны ( $e^+$ ),  $\mu$ -мезоны. Источниками бета-частиц являются радиоактивные ядра. Так как при бета-распаде помимо электрона и позитрона образуется антинейтрино, то спектр излучения бета-частиц получается непрерывным (см. рис. л.р.4.3).

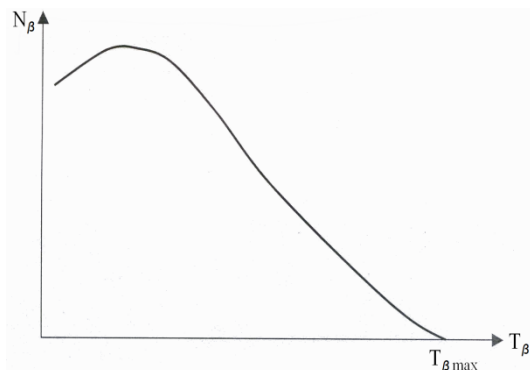


Рис. л.р.4.3 Типичный вид спектра  $\beta$ -частиц в зависимости от энергии (температуры)

Легкие заряженные частицы теряют кинетическую энергию в результате кулоновского взаимодействия при столкновениях с электронами и ядрами атомов вещества. При этом электроны вещества могут переходить на более высокие энергетические уровни (атом возбуждается) или отрываться от атома (атом превращается в ион). В результате дальнего действия кулоновских сил пролетающая через вещество частица испытывает столкновения с очень большим количеством атомарных электронов. Потери энергии легких заряженных частиц на ионизацию и возбуждение атомов вещества называют ионизационными ( $B_{\text{ион.}}$ ).

Так как масса легких заряженных частиц невелика, то в столкновениях с атомами они могут значительно отклоняться от первоначального направления движения. Поэтому их траектория в веществе представляет собой ломаную линию. Двигаясь по искривленной траектории (то есть с ускорением), бета-частицы излучают электромагнитные волны, или так называемое тормозное излучение. Потери энергии легких заряженных частиц на тормозное излучение называют радиационными ( $B_{\text{рад.}}$ ). Потери в расчете на единицу длины пути называют удельными потерями энергии и могут быть рассчитаны аналитически. Необходимо отметить, что ионизация и возбуждение атомов вещества наряду с тормозным излучением широко используется в научных исследованиях, приборостроении, технике, медицине и других прикладных областях знания.

Качественный вид зависимости удельных ионизационных и радиационных потерь от энергии частиц приведен на рис. л.р.4.4. Энергия частиц, при которой ионизационные и радиационные потери равны, называется критической ( $E_{kr}$ ). Величина  $E_{kr}$  уменьшается с ростом порядкового номера вещества  $Z$ , но даже для тяжелых веществ она достаточно велика (например, для свинца  $E_{kr} \approx 7$  МэВ).

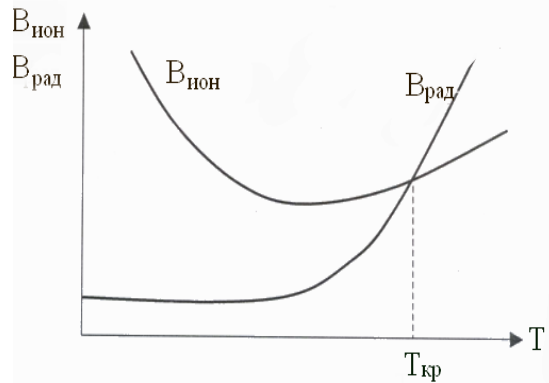


Рис. л.р.4.4. Качественный вид зависимости удельных ионизационных и радиационных потерь от энергии частиц

На практике приходится иметь дело с бета-частицами, энергия которых не превышает единиц МэВ. Максимальная энергия бета-частиц составляет обычно 1–3 МэВ. В связи с этим при проведении инженерных расчетов и оценок, как правило, достаточно учитывать ионизационные потери.

Потери энергии в столкновениях имеют место до тех пор, пока энергия легкой заряженной частицы не станет равной тепловой  $E \sim kT^0$ , где  $E$  — кинетическая энергия частицы,  $T^0$  — температура вещества,  $k$  — постоянная Больцмана. Такие частицы называют термализованными.

Расстояние, пройденное частицей до остановки (термализации) называют пробегом. Пробеги моноэнергетических частиц с начальными энергиями  $E_0 = E_{kr}$  можно рассчитать аналитически. В инженерных расчетах чаще используют экстраполированный пробег  $R_0$ , который находится по эмпирическим формулам, полученным при обработке экспериментально измеренных кривых прохождения для моноэнергетических электронов (пример на рис. л.р.4.5). Под кривой прохождения понимается зависимость числа частиц, прошедших слой вещества  $x$ , от толщины слоя.

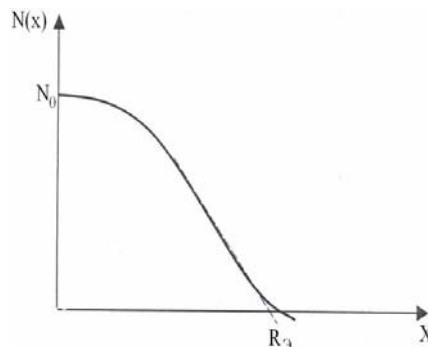


Рис. л.р.4.5. Кривая прохождения для моноэнергетических электронов

Согласно приведенным на рис. л.р.4.5 данным следует, что экстраполированный пробег определяет минимальную толщину мишени, при которой происходит практически полное поглощение частиц в веществе. Величина экстраполированного пробега зависит от энергии частицы и вещества мишени.



**Цель выполнения части 2 лабораторной работы** – приобретение навыков работы в области измерения бета-источников.

**Задания:** работа предполагает выполнение двух не связанных друг с другом заданий. Задания могут выполняться в любой последовательности. При необходимости, например, в случае недостаточного приборного оснащения, может быть выполнено одно из двух заданий, а также проведена замена заданий на другие, связанные с радиометрией бета-излучения и/или определением характеристик бета-источников.

Задание 1: определение характеристик прохождения бета-частиц через защитные материалы.

Задание 2: определение активности бета-источников, имеющих одинаковый изотопный состав.

#### **Требования к оборудованию**

Для измерений могут использоваться любые бета-радиометрические устройства и системы как стационарного, так и переносного типа, а также бета-спектрометры.

В качестве детектора могут быть использованы, в зависимости от поставленной задачи, импульсные ионизационные камеры, самогасящиеся счетчики Гейгера–Мюллера с тонким корпусом, германиевые полупроводниковые детекторы, сцинтилляционные счетчики на основе органических кристаллов (антрацен, стильбен, сцинтиллирующая пластмасса на основе полистирола) и другие.

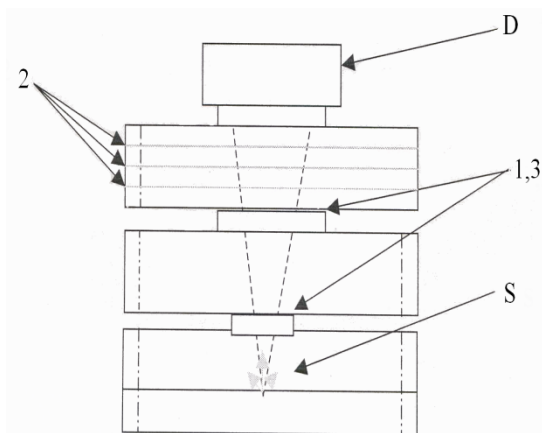
Регистрирующее устройство может обеспечивать не только фиксирование количества электрических сигналов, поступающих от детектора, но и выполнять другие важные измерительные функции, например, измерение амплитуды напряжения или тока, измерение дифференциальных или интегральных спектральных распределений сигналов. Простейшим регистрирующим устройством радиометра может служить электронное пересчетное устройство, снабженное таймером для задания экспозиции измерения, как по времени, так и по количеству импульсов. Регистрирующее устройство может быть оснащено памятью, для хранения информации. Современные интеллектуальные регистрирующие устройства интегрируются в компьютерные управляющие системы со специальным программным обеспечением. Такие системы позволяют осуществлять не только сбор информации, ее анализ и хранение, но и управление регистрирующей системой.

Источник излучения на время измерений желательно располагать в защите, или, при необходимости, экранировать его каким-либо материалом достаточной толщины. Измерения часто проводятся в защитном домике, внутри которого располагается устройство, с помощью которого можно выбрать и фиксировать расстояние между источником и детектором, а также разместить защитные материалы между ними.

Материалы, используемые для изучения характеристик прохождения бета-частиц через вещество, обычно используются в виде металлических фольг одинаковой толщины. Так как пробеги бета-частиц в твердых материалах невелики, то фольги, используемые для экспериментов, должны быть тонкими – например, алюминий, толщиной 100 мкм или медь – 40 мкм. Кроме того, размеры фольг должны быть такими, чтобы существовала возможность их размещения в защитном домике, а поверхность эффективно экранировала детектор от источника излучения.

Один из наборов фольг должен быть изготовлен из алюминия, так как используемые расчетные соотношения характеристик прохождения излучения привязываются обычно к этому материалу.

Помимо фольг в работе должно предусматриваться использование коллиматоров, позволяющих сформировать поток излучения на торцевую поверхность детектора без «подсветки» рассеянным излучением с боковых направлений (см. рис. л.р.4.7). Для изготовления коллиматоров обычно используются материалы с малым атомным номером, не имеющие большого вклада по тормозному излучению, например, алюминий.



S – источник бета-излучения;  
D – детектор;  
1,3 – коллиматоры;  
2 – металлические фольги.

Рис. л.р.4.6. Схема установки по определению характеристик ослабления бета-излучения

### Объект исследования

В качестве источника бета-частиц могут использоваться стандартные плоские образцовые источники, изготовленные промышленными методами на основе бета-излучающих радиоактивных материалов (например,  $^{204}_{81}Tl$ ), наносимых, обычно, на металлические подложки, либо лабораторные образцы, изготовленные каким-либо известным и доступным методом (например, путем электрохимического осаждения).

**Описание задания 1.** Определение характеристик прохождения бета-частиц через защитные материалы.

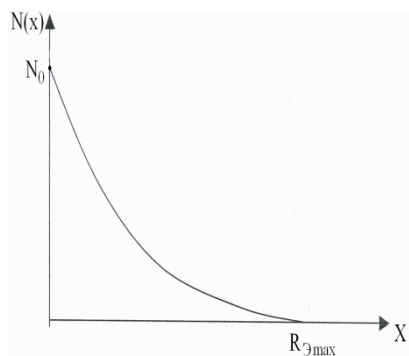


Рис. л.р.4.7. Кривая ослабления бета-излучения.

Так как электроны и позитроны, испускаемые при бета-распаде, имеют непрерывный спектр, то поглощение их в веществе происходит, начиная с малых глубин, а кривая прохождения описывается экспонентой (рис. л.р.4.7), исключая глубину полного поглощения ( $x \sim R_э$ ):

$$N(x) = N_0 \cdot e^{-\mu x}, \quad (\text{л.ф.4.5})$$

где  $N$  – количество бета-частиц в потоке излучения,  
 $x$  – толщина ослабляющего слоя материала.

В задачах прохождения излучения через вещество, обычно используются массовые единицы измерения толщины:  $x_m = x \cdot \rho$ , где  $\rho$  – плотность вещества. В этом случае удельные ионизационные потери и пробеги частиц слабо зависят от типа вещества и не зависят от его агрегатного состояния. В зависимости от единиц измерения толщины мишени ( $x$  или  $x_m$ ) различают линейный  $\mu$  и массовый  $\mu_m$  коэффициенты поглощения.

Толщину поглотителя, уменьшающего поток частиц в два раза, называют толщиной половинного ослабления:

$$d_{1/2} = \ln 2 / \mu \quad (\text{л.ф.4.6})$$

Массовый коэффициент поглощения  $\mu_m$  и экстраполированный пробег в алюминии для бета-частиц с максимальной энергией  $E_{\beta_{\max}}$  в спектре могут быть рассчитаны по следующим эмпирическим соотношениям:

$$\mu_m = 22 / E_{\beta_{\max}}^{4/3}, \text{ см}^2/\text{г}; 0,05 < E_{\beta_{\max}} < 6 \text{ МэВ}; \quad (\text{л.ф.4.7})$$

$$R_{\text{Э}_{\max}}(Al) = 0,542 \cdot E_{\beta_{\max}} - 0,133, \text{ см}^2/\text{г}; 0,8 < E_{\beta_{\max}} < 3 \text{ МэВ}. \quad (\text{л.ф.4.8})$$

Экстраполированный пробег бета-частиц в материале с любым порядковым номером  $Z$  ( $R_{\text{Э}_{\max}}(Z)$ ) можно рассчитать через экстраполированный пробег в алюминии  $R_{\text{Э}_{\max}}(Al)$ :

$$R_{\text{Э}_{\max}}(Z) = R_{\text{Э}_{\max}}(Al) \cdot \frac{(Z/A)_{Al}}{(Z/A)_X}, \quad (\text{л.ф.4.9})$$

где  $Z$  и  $A$  – порядковый номер и массовое число изотопов или элементов.

В работе проводится определение коэффициента поглощения бета-частиц в материале мишени и максимальная энергия бета-спектра, которая определяется на основе построения экспериментальной кривой ослабления потока бета-частиц при прохождении слоев нарастающей толщины. Для измерений используется установка, схема которой показана на рис. л.р.4.6. Между источником и детектором помещают металлические фольги из алюминия и других доступных материалов. Увеличение числа фольг приводит к увеличению толщины экранирующего слоя. Толщина материала увеличивается до тех пор, пока показания (обычно скорость счета) детектора  $N(x)$  не станут постоянными в пределах погрешности измерений фона. В этом случае они будут обусловлены фоновыми импульсами и тормозным излучением, возникающим в материале при прохождении через него бета-частиц.

Толщина мишени, начиная с которой скорость счета не изменяется, определяет экстраполированный пробег бета-частиц с максимальной энергией ( $R_{\text{Э}_{\max}}$ ). Однако, если строить кривую ослабления в обычном масштабе, то величину  $R_{\text{Э}_{\max}}$  с хорошей точностью установить не удастся, так как на «хвосте» кривой ослабления измеренные значения  $N(x)$  сопоставимы по величине с показаниями детектора, обусловленными фоном и тормозным излучением. Точность определения  $R_{\text{Э}_{\max}}$  существенно повышается, если кривую ослабления строить в полулогарифмическом масштабе, то есть по оси ординат откладывать значения  $\ln N(x)$  (см. рис. л.р.4.8).

Тангенс угла наклона прямой  $\alpha$  на рис. л.р.4.8 равен коэффициенту поглощения.  $R_{\text{Э}_{\max}}$  может быть определено графически или с помощью математической обработки результатов построения кривой ослабления.

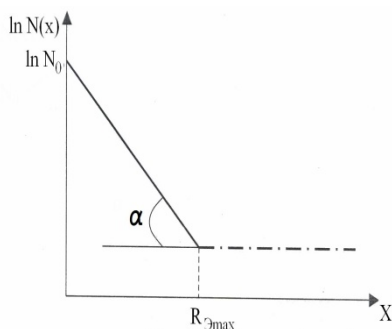


Рис. л.р.4.8. Кривая ослабления бета-излучения в полулогарифмическом масштабе.

## ПОРЯДОК ВЫПОЛНЕНИЯ ЗАДАНИЯ

1. В соответствии с руководством по эксплуатации, подключить установку или используемую измерительную систему к источнику электрического питания. Поднять напряжение и прогреть установку в рабочем режиме в течение рекомендованного промежутка времени.

2. Выполнить определение значения фоновой скорости счета в защитном домике при закрытой дверце с помощью пяти последовательных измерений. Определить среднее значение фонового счета и принять его в качестве истинного. Время измерений выбрать таким образом, чтобы статистическая погрешность измерений не превышала 5 %. Результаты измерений занести в табл. 4.5.

*Таблица 4.5. Результаты измерения скорости фоновых импульсов*

Скорость счета фоновых импульсов ( $N_{\phi}$ )					
В отдельных измерениях					
Среднее значение					

3. Установить в защитный домик источник излучения и коллиматоры. Измерить среднее значение скорости счета детектора при измерении источника в заданных условиях ( $N_{0+\phi}$ ) не менее пяти раз. Определить среднее значение  $N_{0+\phi}$ . Время измерений выбрать таким образом, чтобы статистическая погрешность измерений не превышала 5 %.

Определить значение средней скорости счета ( $N_0$ ) путем вычитания среднего значения скорости счета фона ( $N_{\phi}$ ) из среднего значения скорости счета импульсов от источника ( $N_{0+\phi}$ ). Результаты измерений занести в табл. 4.6.

*Таблица 4.6. Результаты измерения скорости счета импульсов от источника излучения*

Скорость счета импульсов от неэкранированного источника ( $N_{0+\phi}$ )					
В отдельных измерениях					
Среднее значение					
Среднее значение истинной скорости счета импульсов от источника ( $N_0 = N_{0+\phi} - N_{\phi}$ )					

4. Провести измерения скорости счета импульсов детектора, регистрируемых от источника излучений в условиях коллимирования источника излучения и его экранирования от излучения с помощью фольг  $N(x)_{+\phi}$ . Толщину поглощающего слоя из фольг увеличивать последовательно от одной до такого их количества, при котором скорость счета становится постоянной. Для каждой точки кривой ослабления выполнить не менее пяти измерений. Время измерений выбрать таким образом, чтобы статистическая погрешность измерений не превышала 5 %.

Определить среднее значение скорости счета импульсов для разных толщин поглощающего слоя.

Определить истинное среднее значение скорости счета для разных толщин поглощающего слоя  $N(x)$  с помощью соотношения:

$$N(x) = N(x)_{+\phi} - N_{\phi}. \quad (\text{л.ф.4.10})$$

Результаты измерений и вычислений занести в табл. 4.7.

Таблица 4.7. Результаты измерений и определения скорости счета для экранированного детектора

Наименование материала фольг	Толщина поглощ. слоя	Число зарегистрированных детектором импульсов ( $n$ )	Время измерения ( $t$ )	Скорость счета импульсов ( $N(x)_{+\phi} = n/t$ )	Средняя скорость счета импульсов	Истинная скорость счета импульсов ( $N(x)$ )	$\ln N(x)$

5. С помощью одного из доступных графических редакторов построить зависимость  $\ln(N(x))$  для разных поглощающих материалов.

Графически или с помощью математической обработки данных определить значения  $R_{\text{Эmax}}$  для различных поглощающих материалов.

Рассчитать с помощью формулы л.ф.4.9 значение теоретического отношения  $R_{\text{Эmax}}(Z)/R_{\text{Эmax}}(Al)$  и сравнить его со значением, рассчитанным из экспериментальных данных.

Обсудить полученные результаты с преподавателем/инструктором и, при необходимости, повторить измерения и расчеты.

6. Найти значение максимального значения энергии  $\beta$  – спектра с помощью соотношения (л.ф.4.8). Сравнить полученное значение со справочным, соответствующим используемому изотопу – источнику излучения.

Пользуясь графиками или с помощью математической обработки данных, определить массовые коэффициенты поглощения для различных материалов  $\mu_m$  по формуле:

$$\mu_m = \frac{\ln N(x_{m1}) - \ln N(x_{m2})}{|x_{m1} - x_{m2}|}, \quad (\text{л.ф.4.11})$$

где  $\ln N(x_{m1}), \ln N(x_{m2})$  – значения логарифма скорости счета для любых двух толщин материалов  $x_{m1}$  и  $x_{m2}$ , взятых с построенной прямой зависимости  $\ln(N(x))$ .

Полученные результаты обсудить с преподавателем/инструктором. При необходимости повторить вычисления.

**Описание задания 2.** Определение активности бета-источников, имеющих одинаковый изотопный состав.

Определение активности бета-источников одинакового изотопного состава может быть выполнено на основе сравнительных измерений, аналогично тому, как это описано в задании 2 части 1 лабораторной работы для источников альфа-излучения. Для расчета активности может быть использовано соотношение (л.ф.4.4).

Согласно уравнению (л.ф.4.4), для реализации сравнительного метода измерений необходимо иметь, как минимум, два аналогичных по геометрии, а также другим физическим и химическим параметрам источника излучения одинакового изотопного состава. Кроме того, для одного из этих источников значение активности должно быть известно (являться паспортной характеристикой или быть предварительно установлено с помощью какого-либо доступного метода). Погрешность определения при этом будет зависеть от погрешности известной активности, а также погрешностей измерений счета обоих источников. Результирующая погрешность определения активности может быть рассчитана как погрешность косвенного анализа.

Сравнительный метод является более точным, когда в распоряжении экспериментатора находится не один, а несколько источников излучения известной активности. В этом случае может быть построена калибровочная прямая, связывающая счет в заданных условиях

измерений и активность источников. Такая прямая строится на основании результатов измерений всех доступных источников излучения с известной активностью. Полученные экспериментальные данные аппроксимируются с помощью доступного и надежного метода (например, метода наименьших квадратов). Значение активности неизвестного источника будет определяться по его положению на этой прямой, а погрешность измерений – погрешностью линейной аппроксимации.

### ПОРЯДОК ВЫПОЛНЕНИЯ ЗАДАНИЯ

1. В соответствии с руководством по эксплуатации подключить установку или используемую измерительную систему к источнику электрического питания и подать рабочее напряжение. Прогреть установку в рабочем режиме в течение рекомендованного промежутка времени.

2. Поместить бета-источник в защитный домик. Выполнить коллимацию источника излучения по отношению к детектору.

Произвести с помощью преподавателя/инструктора выбор условий измерения источников бета-излучения: расстояния между источником и детектором, длительности измерений.

Расстояние между источниками излучения и детектором и время измерения выбираются исходя из двух условий:

– статистическая погрешность измерений скорости счета от наименее активного источника из измеряемых не должна превышать 5 %;

– нагрузка измерительного тракта от наиболее активного источника бета-излучения не должна превышать 20 % по «мертвому» времени.

3. Извлечь источник из защитного домика. Выполнить определение значения фоновой скорости счета с помощью пяти последовательных измерений. Определить среднее значение фонового счета и принять его в качестве истинного. Результаты измерений занести в табл. 4.8.

Таблица 4.8. Результаты измерения счета фоновых импульсов

Скорость счета фоновых импульсов ( $N_{\phi}$ )					
В отдельных измерениях					
Среднее значение					

При необходимости вычислить погрешность экспериментального определения скорости счета фоновых импульсов.

4. Выполнить измерения источников бета-излучения известной и неизвестной активности. Для каждого источника сделать не менее пяти измерений в выбранных условиях. Вычислить средние значения скорости счета с учетом поправки на фон. Полученные результаты занести в табл. 4.9.

Таблица 4.9 Результаты измерения скорости счета импульсов от источников бета-излучения

Активность источника излучения, Бк. (для источника неизвестной активности не проставляется)				
Значение счета в отдельных измерениях				
Значение счета с учетом поправки на фон				
Среднее значение счета с учетом фона				

При необходимости вычислить погрешность экспериментального определения скорости счета импульсов от детектора.

5. Рассчитать неизвестную активность источника с помощью формулы (л.ф.4.4) или путем построения калибровочной прямой.

6. Обсудить результаты анализов с преподавателем/инструктором. При необходимости уточнить результат анализов, выполнить дополнительные измерения и расчеты.
7. Подготовить отчет о проделанной работе.

#### Контрольные вопросы и задания.

1. Пояснить механизмы потерь энергии электронов.
2. В каких случаях можно учитывать только ионизационные потери?
3. Какую величину называют пробегом частицы?
4. Какую величину называют экстраполированным пробегом электрона? Как экстраполированный пробег электрона может быть рассчитан?
5. Какую зависимость называют кривой ослабления? Нарисовать кривые ослабления для моноэнергетических электронов и  $\beta$ -частиц, дать пояснения.
6. Пояснить, как по измеренной кривой ослабления можно определить максимальную энергию  $\beta$ -спектра.
7. Пояснить, как с помощью кривой ослабления можно определить коэффициент поглощения  $\beta$ -частиц.
8. Оценить среднюю энергию, уносимую антинейтрино при  $\beta$ -распаде  ${}^{204}_{81}\text{Tl}$ . Среднюю энергию электронов  $\beta$ -распада считать равной  $1/3 E_{\beta\text{max}}$ .

#### Часть 3. NS4.3.3. Измерение гамма-источников

##### Краткие теоретические сведения

Масса ядра является одной из основных его характеристик. Ядро – это составная частица, и в зависимости от того, как «упакованы» нейтроны и протоны в ядре, его масса принимает ряд значений. Состояние ядра с наименьшей массой называют основным, все остальные – возбужденными. Возбужденные состояния ядер неустойчивы. Время жизни возбужденного ядра, как правило, невелико и по порядку величины составляет  $10^{-13}$  с. У некоторых ядер существуют так называемые метастабильные состояния, время жизни которых на много порядков больше. Такие ядра называют изомерами.

Основным механизмом, с помощью которого ядро снимает возбуждение, является испускание фотонов  $\gamma$ -излучения, то есть жесткого электромагнитного излучения с характерными для каждого ядра энергиями:



Энергии фотонов  $\gamma$ -излучения, испускаемых ядрами, лежат в диапазоне от нескольких десятков кэВ до единиц МэВ.

Переходы ядер из возбужденных состояний бывают однократными и многоступенчатыми (рис. л.р.4.9).

Помимо испускания фотонов  $\gamma$ -излучения у ядер имеется еще два способа снятия возбуждения – внутренняя электронная конверсия и парная конверсия.

При внутренней электронной конверсии энергия возбуждения ядра ( $W = (m^* - m)c^2$ ) передается одному из электронов атомной оболочки, при этом электрон вылетает из атома. Вылет электронов чаще происходит с внутренних оболочек, ближе расположенных к ядру. При парной конверсии энергия возбуждения ядра  $W$  превращается в электронно-позитронную пару.

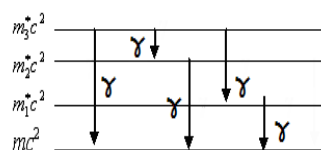


Рис. л.р.4.9. Схема распада возбужденного ядра.

В возбужденном состоянии ядра образуются в результате протекания каких-либо ядерных превращений, в том числе после  $\alpha$  – и  $\beta$  –распада.

Энергия реакции  $Q_\gamma$  определяется разницей энергии покоя исходного и образовавшегося ядра, то есть принимает дискретный ряд значений. Законы сохранения энергии и импульса имеют вид:

$$\begin{cases} Q_\gamma = E_\gamma + E_{я.о.} \\ 0 = \vec{P}_\gamma + \vec{P} \end{cases} \quad (\text{л.ф.4.13})$$

Используя связь между энергией и импульсом:

$$E_\gamma = P_\gamma c; T_{я.о.} = \frac{P^2}{2mc}, \quad (\text{л.ф.4.14})$$

можно из системы уравнений (л.ф.1.13), найти энергии продуктов реакции. Система из двух уравнений с двумя неизвестными имеет единственное решение, поэтому энергии фотонов  $\gamma$ –излучения и ядра отдачи принимают вполне определенные значения. Следовательно, возбужденное ядро испускает моноэнергетические фотоны  $\gamma$ –излучения. Фотон  $\gamma$ –излучения, как безмассовая частица, уносит практически всю энергию, выделившуюся в реакции, то есть  $E_\gamma \approx Q_\gamma$ .

С учетом того, что ядра могут находиться в нескольких возбужденных состояниях, спектр фотонов  $\gamma$ – излучения дискретный, то есть ядра испускают несколько линий. Для каждого изотопа спектр имеет свой характерный вид, и это используется в гамма–спектрометрии.

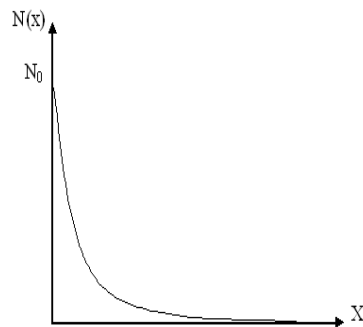


Рис. л.р.4.10. Закон ослабления (или кривая прохождения) моноэнергетических фотонов  $\gamma$ –излучения.

Фотоны  $\gamma$ –излучения испытывают электромагнитное взаимодействие с электронами и ядрами среды. Взаимодействие с ядрами может привести к протеканию так называемых фотоядерных реакций, когда фотон  $\gamma$ –излучения поглощается, а из ядра вылетает протон или чаще нейтрон. Однако вероятность протекания фотоядерных реакций невелика. К тому же такие реакции идут под действием фотонов  $\gamma$ –излучения с достаточно высокими энергиями, превышающими энергию связи нуклонов в ядре, что для большинства ядер составляет около 8–10 МэВ. Эти значения существенно больше энергий, характерных для  $\gamma$ –излучающих ядер. Поэтому, при решении задач о прохождении фотонов  $\gamma$ –излучения через вещество, фотоядерные реакции обычно не учитываются. Существует три основных процесса, определяющих закономерности прохождения фотонов  $\gamma$ –излучения через вещество: фотоэффект, Комптон-эффект и рождение электронно-позитронных пар. Благодаря выше перечисленным процессам взаимодействия, число фотонов  $\gamma$ –излучения в пучке, проходящем через вещество, уменьшается с глубиной по экспоненциальному закону (рис. л.р.4.10.):

$$N(x) = N_0 e^{-\mu x}, \quad (\text{л.ф.4.15})$$



где  $N_0$  – число фотонов  $\gamma$ -излучения первоначально попадающих на вещество,  $N(x)$  – число фотонов  $\gamma$ -излучения, дошедших до глубины вещества  $x$  без взаимодействия,  $\mu$  – коэффициент ослабления фотонов  $\gamma$ -излучения.

Коэффициент ослабления  $\mu$  зависит от типа вещества и энергии фотонов  $\gamma$ -излучения, определяется выражением:

$$\mu = n_0 \sigma = n_0 (\sigma_\phi + \sigma_k + \sigma_n), \quad (\text{л.ф. 4.16})$$

где  $\sigma_\phi, \sigma_k, \sigma_n$  – микроскопические сечения процессов фотоэффекта, Комптон-эффекта и эффекта образования;  $\sigma = (\sigma_\phi + \sigma_k + \sigma_n)$  – полное эффективное сечение взаимодействия фотонов  $\gamma$ -излучения с атомами вещества;  $n_0$  – концентрация атомов вещества (число атомов в единице объема).

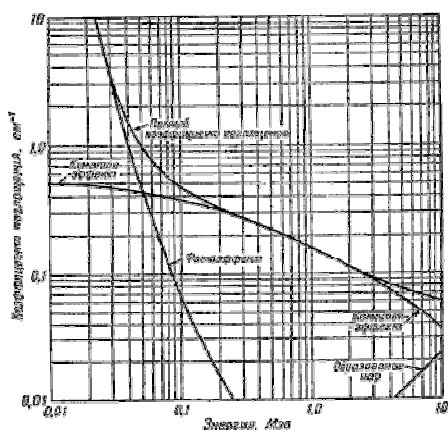


Рис. л.р.4.11. Зависимость линейного коэффициента поглощения фотонов в алюминии от их энергии

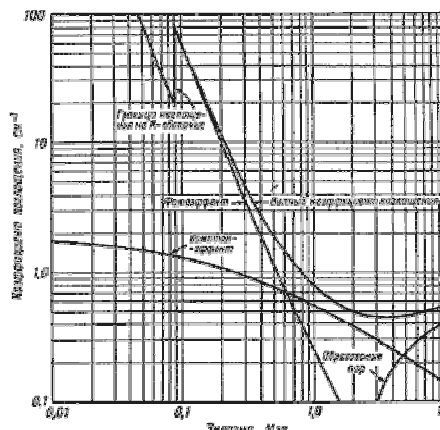


Рис. л.р.4.12 Зависимость линейного коэффициента поглощения фотонов в свинце от их энергии

**Цель выполнения части 3 лабораторной работы** – приобретение навыков работы в области измерения гамма-источников.

**Задания:** работа предполагает выполнение двух не связанных друг с другом заданий. Задания могут выполняться в любой последовательности. При необходимости, например, в случае недостаточного приборного оснащения, может быть выполнено одно из двух заданий, а также проведена замена заданий на другие, связанные с радиометрией гамма-излучения и/или определением характеристик гамма-источников.

Задание 1: определение энергии фотонов гамма-излучения с помощью анализа их ослабления веществом.

Задание 2: определение эффективности детектирования фотонов  $\gamma$ -излучения заданной геометрии измерений с помощью источника фотонов гамма-излучения, имеющего известную активность.

#### Требования к оборудованию

Для измерений могут использоваться любые радиометрические устройства для детектирования фотонов гамма-излучения как стационарного, так и переносного типа, а также гамма-спектрометры.

В качестве детектора могут быть использованы, в зависимости от поставленной задачи, пропорциональные счетчики и самогасящиеся счетчики Гейгера-Мюллера, германиевые полупроводниковые детекторы, сцинтилляционные счетчики на основе неорганических кристаллов (например, NaI(Tl)) и другие.

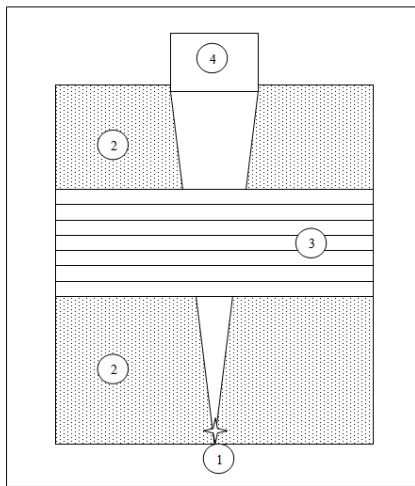
Регистрирующее устройство может обеспечивать не только фиксирование количества электрических сигналов, поступающих от детектора, но и выполнять другие важные измерительные функции, например, измерение амплитуды напряжения или тока, измерение

дифференциальных или интегральных спектральных распределений сигналов. Простейшим регистрирующим устройством радиометра может служить электронное пересчетное устройство, снабженное таймером для задания экспозиции измерения, как по времени, так и по количеству импульсов. Регистрирующее устройство может быть оснащено памятью для хранения информации. Современные интеллектуальные регистрирующие устройства интегрируются в компьютерные управляющие системы со специальным программным обеспечением. Такие системы позволяют осуществлять не только сбор информации, ее анализ и хранение, но и управление регистрирующей системой.

Фотоны гамма-излучения обладают высокой проникающей способностью. Поэтому источник излучения на время измерений желательно располагать в защите, или, при необходимости, экранировать его каким-либо материалом достаточной толщины. Чаще всего измерения проводятся в защитном «домике», внутри которого располагается устройство, с помощью которого можно выбрать расстояние между источником и детектором, коллиматор, а также разместить защитные материалы между ними (см. рис.л.р.4.13).

Материалы, используемые для изучения характеристик прохождения фотонов  $\gamma$ -излучения через вещество, обычно используются в виде пластин одинаковой толщины. Пластины из высокоплотных материалов (железо, медь, свинец) имеют толщину 1–3 мм, малой плотности (алюминий) – 4–5 мм. Кроме того, размеры пластин должны быть такими, чтобы существовала возможность их размещения при существующей конфигурации защиты, а поверхность эффективно экранировала детектор от источника излучения.

Для того чтобы максимально уменьшить влияние рассеянного излучения на результаты измерений, поток излучения от источника лучше коллимировать, а поглощающие пластины установить в разрыв коллиматора. Кроме того, детектор должен быть защищен от рассеянного излучения со всех сторон, кроме коллимированного направления.



- 1 – источник гамма-излучения;
- 2. – коллиматор;
- 3. – поглощающие пластины;
- 4. – детектор гамма-излучения.

Рис. л.р.4.13. Схема экспериментальной установки

#### Объект исследования

В качестве источника фотонов гамма-излучения могут использоваться стандартные точечные образцовые источники, изготовленные промышленными методами на основе гамма-излучающих радиоактивных изотопов (например,  $^{137}_{55}\text{Cs}$ ;  $^{60}_{27}\text{Co}$  и другие), либо лабораторные образцы точечной геометрии, изготовленные каким-либо известным и доступным методом (например, капельным или путем электрохимического осаждения). Предпочтительным является использование источников излучения – монохроматов, имеющих только одну гамма-линию характеристического излучения (например,  $^{137}_{55}\text{Cs}$ ).

**Описание задания 1.** Определение энергии фотонов гамма-излучения с помощью изучения их ослабления веществом.

Величина  $\mu$  в уравнении (л.ф.4.15), также как и в уравнении (л.ф.4.5) имеющая размерность  $\text{см}^{-1}$ , называется линейным коэффициентом ослабления. На рис. л.р.4.11, л.р.4.12 приведена зависимость линейного коэффициента ослабления фотонов  $\gamma$ -излучения в алюминии и свинце в зависимости от энергии фотонов.

В задачах прохождения излучения через вещество толщину слоя обычно измеряют в массовых единицах:  $x_m = x\rho$ ;  $[x_m] = \text{г/см}^2$ . В этом случае в законе ослабления (л.ф.4.15) нужно пользоваться массовыми коэффициентами ослабления  $\mu_m = \mu/\rho$ ;  $[\mu_m] = \text{см}^2/\text{г}$ , который умножается на массу. В литературе, как правило, приводятся значения  $\mu_m$  для разных веществ и энергий.

Так как составляющие коэффициента ослабления гамма-излучения зависят от его энергии (рис. л.р.4.11, л.р.4.12), то и сам коэффициент также зависит от энергии. Данные об ослаблении гамма-излучения различными материалами являются справочными и приводятся в литературе в виде таблиц и графиков. Обычно они связывают энергию фотонов  $\gamma$ -излучения, тип поглощающего материала и его толщину с кратностью ослабления потока излучения, которая может быть выражена отношением  $N_0/N$ .

Согласно уравнению (л.ф.4.15) логарифм кратности ослабления связан с коэффициентом ослабления следующим выражением:

$$\mu_m = \ln(N_0/N) / x_m \quad (\text{л.ф.4.17})$$

В свою очередь, количество фотонов гамма-излучения пропорционально регистрируемой скорости счета в точке детектирования. Поэтому в выражении  $\ln(N_0/N)$ , количество фотонов может быть заменено экспериментально определенными значениями скорости счета фотонного излучения детектором.

Согласно выражению (л.ф.4.17), зависимость коэффициента ослабления от логарифма кратности ослабления является линейной. Поэтому тангенс угла наклона  $\alpha$  прямой ослабления, связывающей эти две величины, будет равен коэффициенту ослабления  $\mu_m$  (по аналогии с рис. л.р.4.8 части 2 лабораторной работы).

Определенное с помощью эксперимента значение коэффициента ослабления  $\mu_m$  в сочетании со знанием материала поглощающего вещества и его толщины, может быть использовано для определения, с помощью графиков или таблиц ослабления, приведенных в справочной литературе, энергии источника излучения.

### ПОРЯДОК ВЫПОЛНЕНИЯ ЗАДАНИЯ

1. В соответствии с руководством по эксплуатации подключить установку или используемую измерительную систему к источнику электрического питания. Поднять напряжение и прогреть установку в рабочем режиме в течение рекомендованного промежутка времени.

2. Выполнить определение значения фоновой скорости счета в заданных условиях измерений (геометрии защиты и коллиматоров) при отсутствии поглощающих пластин. Определить среднее значение фонового счета и принять его в качестве истинного. Время измерений выбрать таким образом, чтобы статистическая погрешность измерений не превышала 5%. Результаты измерений занести в табл. 4.10.

Таблица 4.10. Результаты измерения скорости фоновых импульсов

Скорость счета фоновых импульсов ( $N_{\phi}$ )					
В отдельных измерениях					
Среднее значение					

3. Установить в защитный домик источник излучения и коллиматор. Измерить среднее значение скорости счета детектора при измерении источника в заданных условиях ( $N_{0+\phi}$ ) не менее пяти раз. Определить среднее значение  $N_{0+\phi}$ . Время измерений выбрать таким образом, чтобы статистическая погрешность измерений не превышала 5%.

Определить значение средней скорости счета ( $N_0$ ) путем вычитания среднего значения скорости счета фона ( $N_\phi$ ) из среднего значения скорости счета импульсов от источника ( $N_{0+\phi}$ ). Результаты измерений занести в табл. 4.11.

Таблица 4.11. Результаты измерения скорости счета импульсов от источника излучения

Скорость счета импульсов от неэкранированного источника ( $N_{0+\phi}$ )					
В отдельных измерениях					
Среднее значение					
Среднее значение истинной скорости счета импульсов от источника ( $N_0 = N_{0+\phi} - N_\phi$ )					

4. Произвести измерения скорости счета импульсов детектора, регистрируемых от источника излучений, в условиях ослабления излучения поглощающими материалами разной толщины  $N(x)_{+\phi}$ . Толщину поглощающего слоя из пластин увеличивать последовательно. Количество ослабляющих излучение пластин, используемых в работе, определяется, исходя из приемлемого времени проведения измерений при наибольшей толщине ослабляющего слоя. Время измерений следует выбрать таким образом, чтобы статистическая погрешность измерений не превышала 5%. В целях сокращения времени выполнения лабораторной работы количество ослабляющих слоев и время измерений могут быть рекомендованы студентам преподавателем/инструктором. Для этого процедура определения указанных величин может быть выполнена преподавателем/инструктором заранее. Для каждой точки кривой ослабления излучения выполнить не менее пяти измерений. Определить среднее значение скорости счета импульсов для разных толщин поглощающего слоя.

Согласно выражению (л.ф.4.10) определить истинное среднее значение скорости счета для разных толщин поглощающего слоя  $N(x)$ . Результаты измерений и вычислений занести в табл. 4.12.

Таблица 4.12. Результаты измерений и определения скорости счета для экранированного детектора

Наименование материала фольг	Толщина поглощ. слоя	Число зарегистрированных импульсов ( $n$ )					Время измерения ( $t$ )	Скорость счета импульсов ( $N(x)_{+\phi} = n/t$ )					Средняя скорость счета импульсов	Истинная скорость счета импульсов ( $N(x)$ )	$\ln N(x)$

5. С помощью одного из доступных графических редакторов построить зависимость  $\ln(N(x))$  для разных поглощающих материалов.

6. Пользуясь графиками или с помощью математической обработки данных, определить массовые коэффициенты поглощения для различных материалов  $\mu_m$  по формуле (л.ф.4.11).

Полученные результаты обсудить с преподавателем/инструктором.

7. С помощью справочных данных определить энергию фотонов гамма-излучения. Сравнить полученное значение со справочными (паспортными) данными на источник излучения.

Полученные результаты обсудить с преподавателем/инструктором. При необходимости повторить измерения и вычисления.

**Описание задания 2.** Определение эффективности детектирования фотонов  $\gamma$ -излучения в заданной геометрии измерений с помощью источника фотонов гамма-излучения, имеющего известную активность.

Эффективность детектирования является одной из основных характеристик измерительных систем. Она определяется, как отношение числа зарегистрированных детектором частиц к общему числу частиц, попадающих в детектор от источника излучения.

В общем случае, эффективность регистрации зависит от свойств детектора и измерительной системы: каким образом система воспринимает и преобразует энергию ионизирующего излучения в электрические импульсы; геометрии измерительной системы; поглощающих свойств источника и окружающей среды. Все указанные величины могут быть рассчитаны теоретически. Наиболее пригодным для анализа измерительных систем является метод статистических испытаний – Монте-Карло. Однако чаще эффективность регистрации определяется экспериментально, с помощью калибровочных источников. Калибровочные источники должны позволять с максимальной точностью воспроизводить условия измерения исследуемых образцов. Наиболее простой геометрией образца является точечная. Поэтому на практике для калибровки часто используют точечные образцовые источники фотонов гамма-излучения, имеющие известный радиоизотопный состав и активность.

При наличии калибровочного образца значение эффективности регистрации ( $\varepsilon$ ) определяется с помощью выражения:

$$\varepsilon = N / I, \quad (\text{л.ф.4.18})$$

где  $N$  – скорость регистрации импульсов измерительной системой в заданных условиях детектирования ионизирующего излучения;  $I$  – интенсивность излучения ионизирующего излучения, которая в свою очередь определяется выражением:

$$I = A \cdot \eta, \quad (\text{л.ф.4.19})$$

где  $A$  – активность радиоизотопа (паспортная характеристика для калибровочного источника);  $\eta$  – выход излучения.

Формулы (л.ф.4.18), (л.ф.4.19) могут использоваться в отношении моноэнергетического излучения или излучения эффективной энергии.

### ПОРЯДОК ВЫПОЛНЕНИЯ ЗАДАНИЯ

1. В соответствии с руководством по эксплуатации, подключить установку или используемую измерительную систему к источнику электрического питания. Поднять напряжение и прогреть установку в рабочем режиме в течение рекомендованного промежутка времени.

2. Выполнить определение значения фоновой скорости счета в заданных условиях измерений (геометрии защиты и коллиматоров). Определить среднее значение фоновой скорости и принять его в качестве истинного. Время измерений выбрать таким образом, чтобы статистическая погрешность измерений не превышала 5 %. Результаты измерений занести в табл. 4.10.

Таблица 4.13. Результаты измерения скорости фоновых импульсов

Скорость счета фоновых импульсов ( $N_{\phi}$ )				
В отдельных измерениях				
Среднее значение				

3. Установить в защитный домик калибровочный источник излучения. Измерить среднее значение скорости счета детектора при измерении источника в заданных условиях ( $N_{0+\phi}$ ) не менее пяти раз. Определить среднее значение  $N_{0+\phi}$ . Время измерений выбрать таким образом, чтобы статистическая погрешность измерений не превышала 5 %. Определить значение средней скорости счета ( $N_0$ ) путем вычитания среднего значения скорости счета фона ( $N_{\phi}$ ) из среднего значения скорости счета импульсов от источника ( $N_{0+\phi}$ ). Результаты измерений занести в табл. 4.14.

Таблица 4.14. Результаты измерения скорости счета импульсов от источника излучения

Скорость счета импульсов от неэкранированного источника ( $N_{0+\phi}$ )				
В отдельных измерениях				
Среднее значение				
Среднее значение истинной скорости счета импульсов от источника ( $N_0 = N_{0+\phi} - N_\phi$ )				

4. Используя паспортные и справочные данные, рассчитать с помощью выражений (л.ф.4.18), (л.ф.4.19) значение эффективности регистрации фотонов гамма-излучения для эффективной энергии источника.

При использовании гамма-спектрометра возможно определить эффективность регистрации отдельных энергетических линий излучения.

Полученные результаты обсудить с преподавателем/инструктором. При необходимости, повторить измерения и вычисления.

5. Подготовить отчет о проделанной работе.

#### Контрольные вопросы.

1. Какой спектр имеют фотоны  $\gamma$ -излучения, испускаемые ядрами? Как объясняется вид энергетического спектра?

2. Какой процесс называют «фотоэффектом»? Что происходит с атомами вещества в результате протекания фотоэффекта?

3. Какой процесс называют «Комптон-эффектом»? Что происходит с атомами вещества в результате протекания этого процесса?

4. Какой процесс называют «рождением пар»? При каких условиях возможно протекание этого процесса?

5. Указать характерный диапазон энергий для основных процессов взаимодействия фотонов  $\gamma$ -излучения с веществом. Изобразить качественно зависимость сечения каждого процесса от энергии фотонов.

6. По какому закону убывает число фотонов  $\gamma$ -излучения в моноэнергетическом пучке при прохождении через вещество?

7. Какую величину называют коэффициентом ослабления  $\mu$ ? От чего зависит величина  $\mu$ ? Привести единицы измерения этой величины.

8. Пояснить, как по измеренной кривой ослабления определяется коэффициент ослабления и энергия фотонов  $\gamma$ -излучения.

#### Часть 4. NS4.3.4. Измерение нейтронов

##### Краткие теоретические сведения

Нейтрон является нестабильной элементарной частицей. Период его полураспада составляет  $11,7 \pm 0,3$  мин. Поэтому существование его в природе, возможно только в результате реализации одного из механизмов протекания ядерных реакций.

Возможность получения нейтрона в той или иной реакции определяется энергией связи нейтрона в ядре. Энергетически выгодно получать нейтроны в результате реакций на ядрах, в которых нейтроны наиболее слабо связаны. В этих реакциях может образовываться возбужденное промежуточное ядро с энергией возбуждения, равной сумме энергии связи и кинетической энергии (в системе центра масс) налетающей частицы, которая может быть  $\alpha$ -частицей, протоном, дейтроном, фотоном  $\gamma$ -излучения и так далее. Если энергия возбуждения больше, чем энергия связи «последнего нейтрона» в промежуточном ядре, то вероятность излучения нейтрона достаточно велика. Остаточная энергия возбуждения распределяется в виде кинетической энергии между нейтроном и остаточным ядром. Ядро после вылета нейтрона может оказаться в возбужденном состоянии и перейти затем в основное состояние путем испускания фотона  $\gamma$ -излучения.

Нейтроны, образующиеся непосредственно в ядерных реакциях, носят название мгновенных. Однако часть нейтронов являются результатом вторичных реакций. Такие

нейтроны образуются в результате распада продуктов первичных ядерных реакций и носят название запаздывающих. Время их появления («запаздывание») связано с периодом полураспада новых ядер, образующихся в результате первичной реакции. Классическим примером запаздывающих частиц являются нейтроны, образующиеся при  $\beta^-$ -распаде продуктов деления тяжелых ядер.

Практически все источники нейтронов имеют сложный спектр излучения (исключение – нейтронные генераторы), основная часть которого находится в быстрой области.

Нейтроны спонтанного и вынужденного деления тяжелых ядер схожи по своему составу. Спектр нейтронов деления хорошо описывается приближением Уатта. Однако спонтанное деление, в отличие от вынужденного, объясняется квантово-механическим процессом прохождения через потенциальный барьер. Высота барьера и, соответственно, интенсивность деления сильно зависит от атомного номера  $Z$  и массового числа  $A$ . Наилучшими характеристиками для протекания указанного барьерного процесса обладают четно-четные ядра (например,  $^{232}\text{U}$ ,  $^{240}\text{Pu}$ ,  $^{252}\text{Cf}$ ). Поэтому, в частности, калифорний эффективно используется в качестве изотопного источника нейтронов.

Альфа-частицы могут приводить к образованию нейтронов, вступая в реакции  $(\alpha, n)$  с некоторыми элементами. Однако альфа-распад является процессом прохождения сквозь квантово-механический барьер, подобно спонтанному делению. Кулоновский барьер является достаточно высоким, что делает альфа-распад маловероятным для всех элементов, кроме самых тяжелых. Средняя энергия альфа-частиц, испускаемых обогащенным ураном, составляет 4,7 МэВ. Для плутония средняя энергия альфа-частиц составляет 5,2 МэВ.

Реакция  $(\alpha, n)$  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. Эти свойства обобщаются для ядер изотопов с малой массой. Наибольшим выходом нейтронов обладает Be. Поэтому смеси и эвтектические сплавы бериллия с различными тяжелыми металлами часто используются для создания ампульных источников нейтронов.

Реакция  $(\gamma, n)$  может образовать нейтроны в любом элементе, если энергия гамма-излучения достаточно высока. Обычно минимальная пороговая энергия (~8 МэВ) гораздо больше, чем энергия фотонов  $\gamma$ -излучения, излучаемых радиоактивными нуклидами. Однако пороговые энергии реакции  $(\gamma, n)$  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, например, как  $^{124}\text{Sb}$  или  $^{226}\text{Ra}$ , оболочкой из бериллия или  $\text{D}_2\text{O}$ . Другие реакции, например такие, как  $(n, n\gamma)$  и  $(n, 2n)$ , могут иметь место в образце или детектирующей системе и влиять на наблюдаемую скорость счета.

Существуют источники нейтронов, использующие ускоренные заряженные частицы в ядерных реакциях  $(p, n)$  и  $(d, n)$ . Широкое распространение получили реакции ускоренных до 1 МэВ дейтронов с мишенью из тяжелой воды для получения нейтронов с энергией 4 МэВ или ускоренных до 15 МэВ дейтронов с мишенью из трития для получения нейтронов с энергией 14,5 МэВ. Генераторы нейтронов обычно производят нейтроны со средней энергией 14 МэВ (по  $(d, t)$  реакции) и 2,5 МэВ (по  $(d, d)$  реакции). Преимущества портативных нейтронных генераторов заключаются в том, что они практически не обладают радиационной опасностью в выключенном состоянии при хранении; наличие регулируемого режима излучения нейтронов позволяет производить регистрацию полезных эффектов в интервалах между импульсами нейтронов, что улучшает фоновые условия при измерениях. К недостаткам нейтронных генераторов относится высокая стоимость, ограниченный ресурс работы (до 300 часов), большие габариты и масса, значительное энергопотребление, ограниченное время непрерывной работы (требуется периодическое отключение для охлаждения мишени), нестабильность выхода нейтронов от импульса к импульсу (до 50 %) и невозможность рассматривать нейтронный генератор, как точечный источник в некоторых задачах (например, при обнаружении взрывчатых веществ).

Наиболее мощными источниками нейтронов являются ядерные реакторы, плазменные установки для термоядерного синтеза и ускорители.

**Цель выполнения части 3 NS4.3.4. лабораторной работы** – приобретение навыков работы в области измерения нейтронов.

**Задания:** работа предполагает выполнение одного задания. При необходимости, например, в случае недостаточного приборного оснащения, может быть проведена замена задания на другие, связанные с радиометрией и дозиметрией нейтронов, а также определением характеристик источника излучения.

Задание 1: определение эффективности регистрации быстрых нейтронов.

#### **Требования к оборудованию**

Для измерений могут использоваться любые радиометрические и дозиметрические устройства для детектирования нейтронов как стационарного, так и переносного типа.

В качестве детектора могут быть использованы, в зависимости от поставленной задачи, газовые (например, борные, гелиевые) или сцинтилляционные (например, стильбен, антрацен) счетчики тепловых нейтронов.

Простейшим регистрирующим устройством радиометра может служить электронное пересчетное устройство, снабженное таймером для задания экспозиции измерения, как по времени, так и по количеству импульсов. Регистрирующее устройство может быть оснащено памятью, для хранения информации. Современные интеллектуальные регистрирующие устройства интегрируются в компьютерные управляющие системы со специальным программным обеспечением. Такие системы позволяют осуществлять не только сбор информации, ее анализ и хранение, но и управление регистрирующей системой.

Нейтронное излучение обладает высокой проникающей способностью и сопровождается гамма- и рентгеновским излучением. Поэтому источник излучения на время измерений необходимо располагать в защите или экранировать его каким-либо материалом достаточной толщины. Чаще всего в качестве защиты используются блоки из водородосодержащих материалов, таких как полиэтилен или парафин (можно в сочетании с поглотителями нейтронов – например, бором). При необходимости, защита может быть дополнена материалами, эффективно экранирующими фотоны рентгеновского и гамма-излучения высоких энергий.

Схема измерений представляет собой расположенный в защите источник нейтронов, на некотором удалении от которого находится детектор. В пространство между источником и детектором устанавливается блок замедлителя толщиной несколько сантиметров (не менее 3-х) таким образом, чтобы полностью закрыть рабочую поверхность детектора от быстрых нейтронов. Расстояние между источником и детектором выбирается таким образом, чтобы геометрию источника можно было считать точечной.

#### **Объект исследования**

В качестве источника нейтронов может использоваться любой доступный источник нейтронов небольшой, но известной мощности (ампульный изотопный или нейтронный генератор).

**Описание задания 1.** Определение эффективности регистрации быстрых нейтронов.

Эффективность детектора нейтронного излучения может быть определена с помощью уравнения (л.ф.4.18). Интенсивность излучения  $I$  в точке детектирования принимается равной:

$$I = P / (4\pi R^2), \quad (\text{л.ф.4.20})$$

где  $P$  – мощность источника, нейтрон/с (паспортное значение);  $R$  – расстояние между источником и детектором.

При расчете эффективности детектора делаются следующие допущения:

- все нейтроны источника излучения являются быстрыми;
- самопоглощение нейтронного излучения в источнике не учитывается;
- поглощение и рассеяние нейтронов в пространстве между источником и детектором не учитывается;
- геометрии источника и детектора принимаются точечными;
- все быстрые нейтроны источника излучения конвертируются в тепловые с помощью окружающего детектор замедлителя;



– детектор регистрирует только нейтроны. Сопутствующее нейтронам гамма- и рентгеновское излучение детектором не регистрируются.

### ПОРЯДОК ВЫПОЛНЕНИЯ ЗАДАНИЯ

1. В соответствии с руководством по эксплуатации, подключить установку или используемую измерительную систему к источнику электрического питания. Поднять напряжение и прогреть установку в рабочем режиме в течение рекомендованного промежутка времени.

2. Установить и зафиксировать детектор в рекомендованном преподавателем местоположении вблизи защитного блока источника нейтронного излучения.

3. Выполнить определение значения фоновой скорости счета нейтронов в заданных условиях измерений. Определить среднее значение фонового счета и принять его в качестве истинного. Результаты измерений занести в табл. 4.15.

Таблица 4.15. Результаты измерения скорости фоновых импульсов

Скорость счета фоновых импульсов ( $N_{\phi}$ )					
В отдельных измерениях					
Среднее значение					

4. Установить в защитный блок источник излучения. Измерить среднее значение скорости счета детектора при измерении источника в заданных условиях ( $N_{0+\phi}$ ) не менее пяти раз. Определить среднее значение  $N_{0+\phi}$ . Время измерений выбрать таким образом, чтобы статистическая погрешность измерений не превышала 5 %.

Определить значение средней скорости счета ( $N_0$ ) путем вычитания среднего значения скорости счета фона ( $N_{\phi}$ ) из среднего значения скорости счета импульсов от источника ( $N_{0+\phi}$ ). Результаты измерений занести в табл. 4.16.

Таблица 4.16. Результаты измерения скорости счета импульсов от источника излучения без замедлителя

Скорость счета импульсов от неэкранированного источника ( $N_{0+\phi}$ )					
В отдельных измерениях					
Среднее значение					
Среднее значение истинной скорости счета импульсов от источника ( $N_0 = N_{0+\phi} - N_{\phi}$ )					

5. Разместить замедлитель вокруг детектора. Произвести пять измерений скорости счета импульсов детектора, регистрируемых от источника излучений в условиях замедления нейтронов  $N(x)_{+\phi}$ . Время измерений следует выбрать таким образом, чтобы статистическая погрешность измерений не превышала 5 %. Определить среднее значение скорости счета импульсов для разных толщин поглощающего слоя.

Результаты измерений и вычислений занести в табл. 4.17.

Таблица 4.17. Результаты измерения скорости счета импульсов от источника излучения при наличии замедлителя

Скорость счета импульсов от неэкранированного источника ( $N_{+\phi}$ )					
В отдельных измерениях					
Среднее значение					
Среднее значение истинной скорости счета импульсов от источника ( $N = N_{+\phi} - N_{\phi}$ )					

6. С помощью паспортных данных на источник излучения и согласно результатам измерений средних значений скоростей счета детектора, приведенных в табл. 4.16, 4.17, рассчитать (используя выражения (л.ф.4.20) и (л.ф.4.18)) эффективность детектирования быстрых нейтронов измерительной системой при условии их замедления и без такового.

Результаты вычислений обсудить с преподавателем/инструктором. При необходимости вычисления и измерения повторить.

7. Подготовить отчет о проделанной работе.

### Контрольные вопросы.

1. Какие источники нейтронного излучения вы знаете?
2. Что является ограничивающим фактором для протекания реакции спонтанного деления?
3. Ядра каких элементов способны испытывать  $\alpha$ -распад?
4. Что является ограничивающим фактором для протекания  $(\alpha, n)$  реакции?
5. Смеси каких изотопов являются оптимальными для создания источников нейтронного излучения, основанных на  $(\alpha, n)$  реакции и почему?
6. Назовите известные Вам типы источников нейтронного излучения, основанные на  $(\alpha, n)$  реакции.
7. Что является ограничивающим фактором для протекания  $(\gamma, n)$  реакции?
8. Смеси каких изотопов являются оптимальными для создания источников нейтронного излучения, основанных на  $(\gamma, n)$  и почему?
9. Какие нейтронные реакции и как могут повлиять на анализ ядерных материалов?
10. Какие принципы регистрации нейтронного излучения вы знаете?
11. Опишите принцип работы детектора нейтронов, использованный вами в работе.
12. Почему нейтронное излучение всегда сопровождается другими видами излучений?
13. Какое влияние сопутствующее рентгеновское и гамма-излучение оказывают на регистрацию нейтронов?
14. Для каких детекторов влияние рентгеновского и гамма-излучения на результаты анализов является более заметным?
15. Сравнить результаты измерения эффективности регистрации нейтронов детектором с применением замедлителя и без него. Объясните полученные результаты.

### Список дополнительной литературы

1. Каталог приборов учета и контроля ядерных материалов /Третье издание. – Всероссийский научно исследовательский институт автоматики (ВНИИА), Брукхэвенская национальная лаборатория. Департамент энергетики США, 2009.
2. INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, Safeguard Techniques and Equipment, International Nuclear Verification Series No1 (revised). Vienna. 2003 Edition. p. 92.
3. <http://www.canberra.com/products/>;
4. <http://www.ortec-online.com/Solutions/view-by-type-and-alphabetically.aspx>;
5. <http://www.doza.ru/catalog/>;
6. <http://aspect.dubna.ru/new/index.php>;
7. <http://www.greenstar.ru/devices.html>;
8. К.Н. Мухин Экспериментальная ядерная физика. – М: Энергоатомиздат, 1983.
9. Ю.М. Широков, Н.П. Юдин Ядерная физика (2-е изд.). – М.: Наука, 1980.
10. И. Вучков, Л. Бояджиева, Е. Солаков. Прикладной линейный регрессионный анализ. – М.: Финансы и статистика, 1987.
11. Гмурман В.Е. Теория вероятностей и математическая статистика: Учебное пособие для вузов. – М.: «Высшая школа», 1977.
12. Лавренчик В.Н. Постановка физического эксперимента и статистическая обработка его результатов: Учебное пособие для вузов. – М.: Энергоатомиздат 1986.
13. Абрамов А.И., Казанский Ю.А., Матусевич Е.С. Основы экспериментальных методов ядерной физики. Изд-е 2-е. – М.: Атомиздат, 1977.
14. Голубев Б.П. Дозиметрия и защита от ионизирующего излучения: Учебник для вузов.– М.: Энергоатомиздат, 1986.

## NS4.5 ЭНЕРГЕТИЧЕСКАЯ КАЛИБРОВКА NAI И GE ДЕТЕКТОРОВ. ИДЕНТИФИКАЦИЯ НЕИЗВЕСТНЫХ РАДИАЦИОННЫХ ИСТОЧНИКОВ

### Введение

Гамма–спектрометрический метод анализа позволяет определять радиоизотопный состав и активность излучателей в исследуемых образцах. Однако выполнение анализа сопряжено с рядом подготовительных процедур, среди которых калибровка спектрометра по энергии является одной из основных.

Целью энергетической калибровки является определение связи между положением пика полного фотопоглощения в аппаратурном спектре (номера измерительного канала) и его энергией. Принципы выполнения калибровки по энергии и идентификации радионуклидов являются идентичными для сцинтилляционных и полупроводниковых детекторов (см. рис. л.р.4.14).



Рис. л.р.4.14. Схема выполнения процедуры калибровки  $\gamma$ -спектрометрического тракта по энергии

Энергетическую калибровку обычно выполняют путем измерения спектра от источников излучения с заранее известными энергиями фотонов гамма-излучения. В полученном спектре проводят идентификацию пиков, с помощью которых будет выполняться калибровка. Устанавливают связь между номером измерительного канала и энергией излучения. Проводят проверку и, при необходимости, корректировку энергетической калибровки.

Какая-либо теория, описывающая характер кривой энергетической калибровки, на сегодняшний день отсутствует. Производители оборудования в большинстве случаев предполагают наличие линейной зависимости между номером канала и энергией регистрируемого излучения. На практике энергетическая градуировка хорошей спектрометрической системы может быть действительно с высокой точностью описана простым линейным уравнением:

$$E = mx + b, \quad (\text{л.ф.4.21})$$

где  $E$  – энергия, потерянная фотоном гамма-излучения в детекторе;  $m$  – тангенс угла наклона прямой, характеризующий энергетическую цену одного канала амплитудного анализатора;  $x$  – амплитуда выходного импульса;  $b$  – пересечение оси энергий  $E$  калибровочной прямой в нулевом канале (смещение энергетической шкалы).

Когда в рассматриваемой энергетической области имеется более двух пиков, то для подгонки калибровочной линии по всем пикам, может быть использован метод наименьших квадратов или другой метод аппроксимации экспериментальных данных.

Предположение линейности обычно является достаточным для методик неразрушающего анализа. Однако не существует абсолютно линейных систем, каждая имеет небольшую, но измеримую нелинейность. Когда необходимо получить более точное соотношение, используются полиномы более высоких порядков (часто второго). Значения энергий фотонов гамма-излучения 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.

Часто для определения энергетической градуировки могут использоваться фотоны гамма-излучения от измеряемых образцов. Подобные внутренние градуировки возможны для многих нуклидов и ядерных материалов.

Когда измеряемые нуклиды или ядерные материалы не могут обеспечить требуемую внутреннюю градуировку, используются стандарты изотопов, которые испускают фотоны гамма-излучения с известными энергиями – калибровочные источники излучения. Идеальными для изготовления стандартов являются изотопы, имеющие только одну гамма-линию в спектре излучения (монокроматы). Однако таких радионуклидов, имеющих приемлемый период полураспада, очень мало. Калибровочные источники обычно изготавливаются в виде наборов закрытых источников излучения. Их активность обычно составляет величину порядка 10 кБк для случаев, когда источники располагаются вблизи детектора и 100 кБк, когда калибровочные стандарты располагаются на значительном удалении от него. Широкое распространение получили образцовые источники, содержащие смесь различных изотопов. Радионуклиды в смеси подбираются таким образом, чтобы максимально широко перекрыть диапазон измеряемых энергий.

Значения энергий гамма-излучения для калибровки по энергии и последующей идентификации радионуклидов в измеряемых образцах рекомендуется брать из литературных источников, имеющих высокую, по отношению ко времени издания, актуальность и надежность. К таковым, например, могут быть отнесены данные IAEA-TECDOC-619 (XGAMMA), опубликованные в открытых (включая Internet) источниках данные Decay Data Evaluation Project (DDEP).

Большинство современных измерительных гамма-спектрометрических систем имеют программное обеспечение, позволяющее в большей или меньшей степени автоматизировать процесс калибровки спектрометра по энергии, а также встроенные библиотеки данных о необходимых характеристиках распада радионуклидов.

Энергетическая калибровка измерительного тракта позволяет проводить дальнейшую идентификацию источников излучения, состав которых заранее не известен. Процедура идентификации является обратной по отношению к процедуре энергетической калибровки. На первом ее этапе проводится набор спектра от источника излучения неизвестного радионуклидного состава. Спектр обрабатывается с помощью уже выполненной энергетической калибровки. Благодаря наличию энергетической калибровки для всех пиков полного фотопоглощения в набранном спектре определяются их энергии. Далее проводится анализ энергетического спектра излучения, успешность выполнения которого определяется качеством используемого программного обеспечения, наличием и возможностью использования библиотек ядерных данных, а также мастерством оператора.

Анализ спектра подразумевает последовательный его разбор, в ходе которого каждая из найденных энергетических линий (пиков) приписывается определенному радионуклиду или нескольким радионуклидам, в случае, если происходит слияние близкорасположенных линий в мультиплеты. Анализ обычно проводится, начиная с высокоэнергетической части спектра. Наличие пиков полного поглощения в этой области часто позволяет с высокой степенью достоверности утверждать о наличии в исследуемом образце того или иного радионуклида. В

свою очередь низкоэнергетические линии предполагаемого радионуклида также приписываются ему и не могут использоваться для идентификации других радиоизотопов. Последовательное продвижение из высокоэнергетической области в низкоэнергетическую должно, в идеале, позволить приписать все имеющиеся в спектре энергетические линии тому или иному радионуклиду и, таким образом, выполнить идентификацию всех радионуклидов, присутствующих в образце.

Помимо соответствия спектра гамма-излучения схеме распада радионуклида, при проведении идентификации должны учитываться другие свойства радиоизотопов: период полураспада; значения выходов излучения в схеме распада; происхождение радионуклида – например, является ли он продуктом деления, активации, естественным радионуклидом; тип материала и его агрегатное состояние – например, металл, неметалл, газ. Кроме того, анализ спектра осложняется наличием в нем ложных энергетических пиков, связанных с различными механизмами взаимодействия излучения с детектором: возможностью суммирования отдельных пиков, наличием вылета (утечки излучения), возбуждением рентгеновского излучения в окружающих детектор материалах, аннигиляцией позитронного излучения. Существенное влияние на результаты идентификации радионуклидов в образце может оказать установленный порог обнаружения пиков (минимальный уровень возвышения над фоновым континуумом). Если этот порог мал, то существует большая вероятность учета ложных пиков. С другой стороны – высокий порог обнаружения может не позволить определить наличие в пробе радионуклида малой активности. Поэтому идентификация радионуклидного состава образцов, имеющих большое количество излучателей разного происхождения, представляет собой достаточно сложную и трудоемкую задачу. Существующее программное обеспечение облегчает решение задачи и позволяет выполнить ее в автоматическом режиме, однако обычно не учитывает или учитывает не полностью наличие перечисленных особенностей и свойств исследуемого образца, а также условия настройки оборудования. Автоматическая обработка спектра может привести к неудовлетворительному результату, например, по причине использования несоответствующей характеру исследуемого образца библиотеки ядерных данных, отсутствию учета его свойств и особенностей формирования спектра. Оператору, выполняющему анализ, необходимо внимательно относиться к полученным результатам, оценивать их достоверность и, при необходимости, самостоятельно проводить дополнительный анализ, позволяющий устранить ошибки идентификации.

**Целью лабораторной работы** является изучение принципов выполнения процедур калибровки по энергии гамма-спектрометрических трактов со сцинтилляционным/полупроводниковым детектором и последующей идентификации с их помощью радионуклидного состава излучателей в образце неизвестного радиоизотопного состава.

Основными **задачами работы** являются:

– закрепление теоретических знаний в области измерения ионизирующего излучения, изложенных в разделе 4.5 курса NS4 Методы и приборы для измерения ядерных и других радиоактивных материалов IAEA Nuclear Security Series No.12;

– приобретение навыков практической работы с гамма-спектрометрическим оборудованием;

– изучение принципов выполнения калибровки гамма-спектрометрических трактов по энергии и особенностей идентификации источников излучения с помощью сцинтилляционного и полупроводникового детекторов.

Для занятия в лаборатории создаются подгруппы студентов не более 3–4 человека, выполняющих работу совместно.

Лабораторные занятия проводятся в три этапа – подготовительный, основной и защита. Подготовительный этап представляет собой самостоятельную работу студентов по изучению теоретического материала, ознакомлению с инструкциями по эксплуатации оборудования и прикладного программного обеспечения. Длительность подготовительного этапа составляет от 4 до 8-ми часов и может варьироваться в зависимости от сложности используемого оборудования, программного обеспечения, а также степени теоретической подготовленности обучающихся.

Основной этап проводится в лаборатории и включает практическую работу студентов с доступным гамма-спектрометрическим оборудованием под руководством преподавателя или инструктора. Длительность основного этапа составляет от двух до четырех часов аудиторных занятий в зависимости от содержания выполняемых работ, сложности используемого оборудования и степени подготовленности обучающихся.

Защита предваряется самостоятельной работой студентов, связанной с обработкой полученных экспериментальных данных, а также подготовкой ответов на контрольные вопросы и задания. Длительность самостоятельной работы составляет 4–6 часов. Защита отдельной группы обучающихся проводится преподавателем и занимает не более 2-х часов аудиторного времени.

Содержание лабораторной работы разбито на две части в соответствии с типом используемой гамма-спектрометрической системы (сцинтилляционной или полупроводниковой). Каждая часть является логически завершенной и может выполняться вне зависимости от другой.

Для обработки результатов измерений и расчета погрешностей при выполнении заданий различных частей лабораторной работы, могут использоваться стандартные статистические методы анализа результатов измерений и вычислений.

### ***Часть 1. NS4.5.1. Проведение калибровки по энергии и идентификации радионуклидного состава источника излучения с помощью гамма-спектрометрического тракта со сцинтилляционным детектором***

#### ***Краткие теоретические сведения***

Одним из основных свойств сцинтилляционных детекторов является их низкая разрешающая способность. Указанное свойство определяет ряд особенностей сцинтилляционных детекторов по отношению к процедурам энергетической калибровки и идентификации радионуклидов:

– отсутствует необходимость в разбиении спектра на большое число каналов. В большинстве случаев 512 или 1024 измерительных каналов оказывается вполне достаточно;

– так как пики близких по значению энергий не могут быть разрешены сцинтилляционным детектором, то для его калибровки по энергии лучше использовать источники, обладающие отдельными, ярко выраженными энергетическими линиями (например,  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{54}\text{Mn}$ ) или радионуклиды, имеющие небольшое число энергетических линий, расположенных на значительном удалении друг от друга (например,  $^{22}\text{Na}$ ,  $^{65}\text{Zn}$ ,  $^{60}\text{Co}$ );

– для калибровки по энергии достаточно использовать уравнение (л.ф.4.21) с нулевым значением пересечения ( $b = 0$ ). Построение прямой может выполняться по 2-м точкам;

– трудно, а часто практически невозможно, выполнять идентификацию радионуклидного состава образца, содержащего смесь нескольких радиоизотопов, линии которых перекрываются при их регистрации сцинтилляционным детектором.

**Цель выполнения части 1 NS4.5.1. лабораторной работы** – приобретение навыков в калибровке гамма-спектрометрической системы со сцинтилляционным детектором по энергии.

**Задания:** работа предполагает выполнение двух заданий, которые должны исполняться последовательно.

Задание 1: калибровка гамма-спектрометрического тракта со сцинтилляционным детектором по энергии.

Задание 2: определение радионуклидного состава лабораторного образца.

#### **Требования к оборудованию**

Для измерений могут использоваться любые гамма-спектрометрические системы как стационарного, так и переносного типа, с неорганическим (например,  $\text{NaI(Tl)}$ ) детектором (например, Inspector-1000 с ПО Genie 2000 или другие см. список дополнительной литературы). Органические сцинтилляторы не могут использоваться для гамма-спектрометрических измерений и служат, обычно, для детектирования нейтронного излучения.

Фотоны гамма-излучения обладают высокой проникающей способностью. Поэтому источник излучения на время измерений желательно располагать в защите, или, при необходимости, экранировать его каким-либо материалом достаточной толщины.

### **Объект исследования**

В качестве источников фотонов гамма-излучения можно использовать образцовые точечные источники излучения или лабораторные образцы любой формы и агрегатного состояния, с известным радиоизотопным составом.

**Описание задания 1.** Калибровка гамма-спектрометрического тракта со сцинтилляционным детектором по энергии.

Калибровку гамма-спектрометрического тракта со сцинтилляционным детектором по энергии удобно проводить, выполняя набор спектра от источника, содержащего одну или несколько отдельно стоящих линий гамма-излучения.

Длительность набора спектра определяется временем формирования статистически значимых пиков полного фотопоглощения правильной формы в области интереса.

После завершения набора спектра, пики должны быть идентифицированы в соответствии со своей энергией и данными о радионуклидном составе источника излучения.

На основании результатов измерений строится калибровочная прямая и определяется калибровочная функция, соответствующая уравнению (л.ф.4.21).

На основании результатов анализа проводится калибровка гамма-спектрометрической системы по энергии.

### **ПОРЯДОК ВЫПОЛНЕНИЯ ЗАДАНИЯ**

1. В соответствии с руководством по эксплуатации подключить измерительную и управляющую системы гамма-спектрометрического тракта к источнику(ам) электрического питания.

2. Ознакомиться с помощью преподавателя/инструктора с рабочим меню программного обеспечения, предназначенного для управления измерительной системой.

3. Поднять напряжение на детекторе до рабочего значения, в соответствии с паспортными характеристиками на сцинтилляционный детектор. Прогреть систему в рабочем режиме в течение рекомендованного промежутка времени.

4. Убедиться в работоспособности системы путем пробного набора фонового спектра за короткий (10–30 с) промежуток времени.

5. Установить калибровочный источник излучения для измерений.

6. Провести набор спектра излучения источника.

7. Провести идентификацию пиков полного поглощения в набранном спектре с помощью имеющейся информации об источнике излучения. Результаты идентификации занести в табл. 4.18.

*Таблица 4.18. Результаты идентификации спектральных линий калибровочного источника*

Номер канала			
Энергия излучения, кэВ			

8. Выполнить с помощью доступного графического редактора или вручную построение калибровочной прямой, используя 1–3 экспериментальных точки из табл.4.18. Рекомендуется провести прямую через начало координат или как можно ближе к указанному положению.

9. Выполнить калибровку спектрометрического тракта по энергии в соответствии с процедурой, предусмотренной используемым программным обеспечением для обработки результатов гамма-спектрометрического анализа.

10. Обработать калибровочный спектр с помощью полученной энергетической калибровки. Результаты калибровки обсудить с преподавателем/инструктором. При необходимости выполнить процедуру калибровки по энергии спектрометрической системы повторно.

**Описание задания 2.** Определение радионуклидного состава лабораторного образца.

Задание 2 должно выполняться сразу после завершения выполнения Задания 1 лабораторной работы. Такая последовательность необходима, чтобы обеспечить наличие актуальной по времени энергетической калибровки гамма-спектрометрической системы.

Для измерений может использоваться любой доступный в лаборатории образец, содержащий радионуклиды естественного или искусственного происхождения. Однако



необходимо, чтобы линии гамма-излучения от образца не перекрывали друг друга и позволяли проводить его анализ с помощью сцинтилляционного детектора. В качестве лабораторных могут использоваться калибровочные (стандартные) образцы.

Анализ радионуклидного состава должен выполняться как вручную, так и с помощью прикладного программного обеспечения.

Перед проведением анализа рекомендуется ознакомить обучающихся с принципами создания библиотек ядерных данных, а также особенностями используемого для этих целей прикладного программного обеспечения.

### ПОРЯДОК ВЫПОЛНЕНИЯ ЗАДАНИЯ

1. Ознакомиться с помощью преподавателя/инструктора с принципами и порядком создания библиотек ядерных данных для идентификации радионуклидного состава исследуемых образцов.

2. Ознакомиться с помощью преподавателя/инструктора с программным обеспечением для создания библиотек ядерных данных для гамма-спектрометрического анализа.

3. Создать библиотеку для анализа спектра фонового излучения с помощью существующего программного обеспечения гамма-спектрометрической системы.

4. Ознакомиться с помощью преподавателя/инструктора с рабочим меню прикладного программного обеспечения, предназначенным для настройки и проведения идентификации радионуклидного состава исследуемых образцов.

5. Провести набор фонового спектра. Выполнить идентификацию присутствующих в фоновом спектре пиков в режиме автоматической обработки и вручную. Результаты анализа занести в табл. 4.19.

Таблица 4.19. Результаты идентификации спектральных линий в фоновом спектре

Энергия пика полного поглощения							
Результат автоматической идентификации пиков							
Результат идентификации пиков оператором							

Результата идентификации радионуклидного состава излучателей фонового спектра обсудить с преподавателем/инструктором.

6. С помощью преподавателя/инструктора создать библиотеку для анализа спектра лабораторного образца.

7. Установить лабораторный образец для измерений.

8. Провести набор спектра излучения образца. Вычесть фоновый спектр в том случае, если программное обеспечение позволяет выполнить такую операцию.

9. Провести идентификацию пиков полного поглощения в набранном спектре в автоматическом режиме и вручную. Пики, идентифицированные как фоновые, не учитывать. Результаты идентификации занести в табл. 4.20.

Таблица 4.20. Результаты идентификации спектральных линий в фоновом спектре

Энергия пика полного поглощения							
Результат автоматической идентификации пиков							
Результат идентификации пиков оператором							

Результаты идентификации радионуклидного состава излучателей в лабораторном образце обсудить с преподавателем/инструктором. При необходимости выполнить процедуру идентификации радионуклидов в лабораторном образце повторно.

8. Подготовить отчет о проделанной работе.

### Контрольные вопросы к части 1 NS4.5.1. лабораторной работы №2.

1. Какие типы сцинтилляционных детекторов вы знаете? Какие из них могут использоваться для гамма-спектрометрического анализа?



2. Какой тип сцинтилляционного детектора используется в лабораторной работе? Каковы его основные технические характеристики?
3. Какие особенности калибровки по энергии сцинтилляционных детекторов вы знаете?
4. Какое математическое приближение используется при калибровке сцинтилляционного детектора по энергии?
5. Каким образом плохое разрешение сцинтилляционного детектора влияет на идентификацию радионуклидов?
6. Какие ограничения по идентификации радионуклидного состава возникают при использовании гамма-спектрометрической системы со сцинтилляционным детектором?
7. Какими особенностями обладает спектр фонового излучения, снятый с помощью сцинтилляционного детектора?

**Часть 2. NS4.5.2. Проведение калибровки по энергии и идентификации радионуклидного состава источника излучения с помощью гамма-спектрометрического тракта с полупроводниковым детектором**

*Краткие теоретические сведения*

Одним из основных свойств полупроводниковых детекторов является их высокая разрешающая способность. Указанное свойство определяет ряд особенностей полупроводниковых детекторов по отношению к процедурам энергетической калибровки и идентификации радионуклидов:

– для полноценной реализации возможностей хорошего разрешения необходимо разбиение измеряемого спектра на большое число каналов. В большинстве случаев гамма-спектрометрические системы с полупроводниковым детектором имеют от 4096 до 16384, а некоторые даже 32768 каналов;

– так как для полупроводникового детектора практически отсутствуют проблемы с разрешением близко стоящих пиков, то для калибровки по энергии можно использовать большое количество разнообразных источников излучения. Использование большого числа источников излучения позволяет разбить калибровочную область на подобласти, в которых калибровка по энергии может проводиться самостоятельно;

– для калибровки по энергии можно пользоваться различными приближениями, не ограничиваясь уравнением (л.ф.4.21). При использовании уравнения (л.ф.4.21) для энергетической калибровки значение коэффициента  $b$  обычно не обнуляется, а находится экспериментально;

– отсутствуют какие-либо ограничения по идентификации радионуклидов в смеси. Количество и тип излучателей в смеси может быть практически неограниченным;

– имеется возможность и существует специальное программное обеспечение для расчета мультиплетных пиков полного фотопоглощения.

**Цель выполнения части 2 NS4.5.2. лабораторной работы** – приобретение навыков в калибровке гамма-спектрометрической системы с полупроводниковым детектором по энергии.

**Задания:** работа предполагает выполнение двух заданий, которые должны выполняться последовательно.

Задание 1: калибровка гамма-спектрометрического тракта с полупроводниковым детектором по энергии.

Задание 2: определение радионуклидного состава лабораторного образца.

**Требования к оборудованию**

Для измерений могут использоваться любые гамма-спектрометрические системы как стационарного, так и переносного типа, с полупроводниковыми твердотельными детекторами любого типа, предназначенными для измерения гамма-излучения (планарными, коаксиальными или улучшенной геометрии, см. подробнее список рекомендованной литературы).

Фотоны гамма-излучения обладают высокой проникающей способностью. Поэтому источник излучения на время измерений желательно располагать в защите, или, при необходимости, экранировать его каким-либо материалом достаточной толщины.

Полупроводниковые детекторы для гамма-спектрометрического анализа обычно рассчитаны на работу при температуре жидкого азота. При обращении с жидким азотом

необходимо применять меры предосторожности от возможного причинения вреда путем мгновенного обморожения.

#### **Объект исследования**

В качестве источников фотонов гамма-излучения можно использовать образцовые точечные источники излучения или лабораторные образцы любой формы и агрегатного состояния, с известным радиоизотопным составом.

**Описание задания 1.** Калибровка по энергии гамма-спектрометрического тракта с полупроводниковым детектором.

Калибровку гамма-спектрометрического тракта с полупроводниковым детектором по энергии удобно проводить, выполняя набор спектра от группы образцовых источников с энергетическими линиями, максимально перекрывающими рабочий диапазон детектора, или от источника, содержащего смесь радионуклидов.

Длительность набора спектра определяется временем формирования статистически значимых пиков полного фотопоглощения правильной формы в области интереса.

После завершения набора спектра пики должны быть идентифицированы в соответствии со своей энергией и данными о радионуклидном составе источника излучения.

На основании результатов измерений строится калибровочная зависимость и определяется калибровочная функция, соответствующая уравнению (л.ф.4.21), полиному 2-го или 3-го порядка.

На основании результатов анализа проводится калибровка гамма-спектрометрической системы по энергии.

### **ПОРЯДОК ВЫПОЛНЕНИЯ ЗАДАНИЯ**

1. В соответствии с руководством по эксплуатации, подключить измерительную и управляющую системы гамма-спектрометрического тракта к источнику(ам) электрического питания.

2. Ознакомиться с помощью преподавателя/инструктора с рабочим меню программного обеспечения, предназначенного для управления измерительной системой.

3. Убедиться в том, что детектор охлажден.

4. Поднять напряжение на детекторе до рабочего значения, в соответствии с паспортными характеристиками на полупроводниковый детектор. Прогреть систему в рабочем режиме в течение рекомендованного промежутка времени.

5. Убедиться в работоспособности системы путем пробного набора фонового спектра за короткий (10–30 с) промежуток времени.

6. Установить набор калибровочных источников, или смешанный источник излучения, в положение для измерений.

7. Провести набор спектра излучения источника.

8. Провести идентификацию пиков полного поглощения в набранном спектре с помощью имеющейся информации об источниках излучения. Результаты идентификации занести в табл. 4.21.

*Таблица 4.21. Результаты идентификации спектральных линий калибровочного источника*

Номер канала													
Энергия излучения, кэВ													

9. Выполнить с помощью доступного графического редактора, встроенного в программное обеспечение, построение калибровочной прямой, используя экспериментальные точки из табл.4.18 и различные модели аппроксимации (линейную, полиномиальную). Обсудить результаты с преподавателем/инструктором. При необходимости изменить количество точек, используемых в построении.

10. Выполнить калибровку спектрометрического тракта по энергии в соответствии с процедурой, предусмотренной используемым программным обеспечением для обработки результатов гамма-спектрометрического анализа.

11. Обработать калибровочный спектр с помощью полученной энергетической калибровки. Результаты калибровки обсудить с преподавателем/инструктором. При необходимости выполнить процедуру калибровки спектрометрической системы по энергии повторно.

**Описание задания 2.** Определение радионуклидного состава лабораторного образца.

Задание 2 должно выполняться сразу после завершения выполнения Задания 1 лабораторной работы. Такая последовательность необходима, чтобы обеспечить наличие актуальной по времени энергетической калибровки гамма-спектрометрической системы.

Для измерений может использоваться любой доступный в лаборатории образец, содержащий радионуклиды естественного или искусственного происхождения. Наибольший интерес представляют образцы, содержащие большое количество разнообразных по происхождению радионуклидов. В качестве лабораторных могут использоваться калибровочные образцы.

Анализ радионуклидного состава должен выполняться как вручную, так и с помощью прикладного программного обеспечения.

Перед проведением анализа рекомендуется ознакомить обучающихся с принципами создания библиотек ядерных данных, а также особенностями используемого для этих целей прикладного программного обеспечения.

#### **ПОРЯДОК выполнения задания**

1. Ознакомиться с помощью преподавателя/инструктора с принципами и порядком создания библиотек ядерных данных для идентификации радионуклидного состава исследуемых образцов.

2. Ознакомиться с помощью преподавателя/инструктора с программным обеспечением для создания библиотек ядерных данных для гамма-спектрометрического анализа.

3. Создать библиотеку для анализа спектра фонового излучения с помощью существующего программного обеспечения гамма-спектрометрической системы.

4. Ознакомиться с помощью преподавателя/инструктора с рабочим меню прикладного программного обеспечения, предназначенным для настройки и проведения идентификации радионуклидного состава исследуемых образцов.

5. Провести набор фонового спектра. Выполнить идентификацию присутствующих в фоновом спектре пиков в режиме автоматической обработки и вручную. Результаты анализа занести в табл. 4.22.

*Таблица 4.22. Результаты идентификации спектральных линий в фоновом спектре*

Энергия пика полного поглощения																		
Результат автоматической идентификации пиков																		
Результат идентификации пиков оператором																		

Результаты идентификации радионуклидного состава излучателей фонового спектра обсудить с преподавателем/инструктором.

6. С помощью преподавателя/инструктора создать библиотеку для анализа спектра лабораторного образца.

7. Установить лабораторный образец для измерений.

8. Провести набор спектра излучения образца.

9. Провести идентификацию пиков полного поглощения в набранном спектре в автоматическом режиме и вручную. Результаты идентификации занести в табл. 4.23.



10. Какие факторы и почему оказывают влияние на результаты проведения идентификации радионуклидного состава образцов?

**Список дополнительной литературы**

1. Каталог приборов учета и контроля ядерных материалов /Третье издание. – Всероссийский научно исследовательский институт автоматики (ВНИИА), Брукхэвенская национальная лаборатория. Департамент энергетики США, 2009.

2. INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, Safeguard Techniques and Equipment, International Nuclear Verification Series No1 (revised). Vienna. 2003 Edition. p. 92.

3. Н.Г.Волков, В.А.Христофоров, Н.П.Ушакова Методы ядерной спектрометрии. – М.: Энергоатомиздат, 1990.

4. Альфа-, бета- и гамма-спектрометрия. Под редакцией К.Зигбана. Атомиздат, Москва, 1969.

5. Practical Gamma-ray Spectrometry, 2nd Edition, Gordon R. Gilmore, Nuclear Training Services Ltd Warrington, UK, John Wiley & Ltd, 2008.

6. Gamma- and X-Ray spectrometry with semiconductor detector. – Klaus Debertin, Richard G. Helmer North-Holland, Amsterdam, Oxford, New York, Tokyo, 1988.

7. F. Adams and R. Dams. Applied Gamma-Ray Spectrometry. – New York: Pergamon Press, 1975.

8. Панов Е.А. Практическая гамма-спектрометрия на атомных станциях. – М.: Энергоатомиздат, 1990.

## NS4.6 ИЗМЕРЕНИЕ ОБОГАЩЕНИЯ $^{235}\text{U}$ И КОЛИЧЕСТВА УРАНА В ОБРАЗЦЕ

### 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. Удельное содержание изотопа  $^{235}\text{U}$  в образце обычно называют «обогащением урана». Термин обогащение используется потому, что содержание  $^{235}\text{U}$  в материалах топливного цикла обычно выше, чем в природном уране.

Обогащение может быть выражено в атомарных или весовых единицах. Атомарное содержание  $^{235}\text{U}$  в уране определяется следующим выражением:

$$E_a (\text{ат.}\%) = \frac{\text{Число} \cdot \text{атомов } ^{235}\text{U}}{\text{Число} \cdot \text{атомов U}} \cdot 100\% \quad (\text{л.ф.4.22})$$

Обогащение так же может быть выражено как «весовое содержание»:

$$E_w (\text{вес.}\%) = \frac{\text{Количество} \cdot \text{граммов } ^{235}\text{U}}{\text{Количество} \cdot \text{граммов U}} \cdot 100\% \quad (\text{л.ф.4.23})$$

Отношение «весового содержания» к атомарному определяется выражением:

$$E_w (\text{вес.}\%) = \frac{235 E_a}{238 - 0,03 E_a} \approx \frac{235}{238} E_a \quad (\text{л.ф.4.24})$$

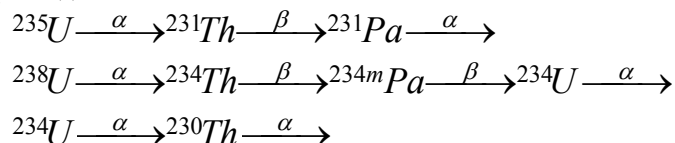
Таблица 4.24. Наиболее интенсивные гамма-линии урана

Изотоп	Энергия гамма-излучения, кэВ	Удельная интенсивность излучения, квант/с·г изотопа
$^{232}\text{U}$	129,1	$6,5 \cdot 10^8$
	270,5	$3,0 \cdot 10^7$
	327,8	$2,7 \cdot 10^7$
$^{233}\text{U}$	119,0	$3,9 \cdot 10^4$
	120,8	$3,2 \cdot 10^4$
	146,4	$6,6 \cdot 10^4$
	164,6	$6,4 \cdot 10^4$
	245,3	$3,8 \cdot 10^4$
	291,3	$5,8 \cdot 10^4$
$^{234}\text{U}$	317,2	$8,3 \cdot 10^4$
	120,9	$5,4 \cdot 10^5$
$^{235}\text{U}$	143,8	$7,8 \cdot 10^3$
	163,4	$3,7 \cdot 10^3$
	185,7	$4,3 \cdot 10^4$
	202,1	$8,0 \cdot 10^2$
	205,3	$4,0 \cdot 10^3$
$^{238}\text{U}$ равновесии $^{234\text{m}}\text{Pa}$	742,8	7,1
	766,4	$2,6 \cdot 10^1$
	786,3	4,3
	1001,0	$7,5 \cdot 10^1$

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  $^{235}\text{U}$ . Однако для образцов урана низкого обогащения, наиболее интенсивным компонентом в спектре излучения, является рентгеновское излучение. При измерении обогащения  $^{235}\text{U}$  наиболее часто используется линия гамма-излучения с энергией фотонов 185,7 кэВ. Она является самой выделенной одиночной

линией гамма-излучения для любых образцов урана с обогащением по  $^{235}\text{U}$  выше природного уровня. Обычно интерференции спектральных линий нет, кроме случая регенерированного топлива, в котором фотоны с энергией 236 кэВ изотопа  $^{212}\text{Pb}$ , дочернего продукта распада  $^{232}\text{Th}$ , накладываются на линию  $^{235}\text{U}$ . В табл. 4.24 приведены наиболее интенсивные гамма-линии изотопов урана.

В природе преобладают три изотопа урана (в круглых скобках приведено содержание атомов этих изотопов):  $^{238}\text{U}$  (99,27 %),  $^{235}\text{U}$  (0,720 %) и  $^{234}\text{U}$  (0,006 %).  $^{234}\text{U}$  образуется в результате альфа-распада  $^{238}\text{U}$ :



Если образец получен в реакторе, в нем также могут присутствовать другие изотопы урана, включая  $^{236}\text{U}$ , получаемый в результате захвата нейтрона ядром  $^{235}\text{U}$ , и  $^{237}\text{U}$  в результате протекания ядерной реакции ( $n,2n$ ) на ядрах  $^{238}\text{U}$ .

**Целью лабораторной работы** является изучение существующих методов определения обогащения урана.

Основными **задачами работы** являются:

- закрепление теоретических знаний в области проведения изотопного анализа ядерных материалов, изложенных в разделе 4.5 курса NS4 Методы и приборы для измерения ядерных и других радиоактивных материалов IAEA Nuclear Security Series No.12;
- приобретение навыков практической работы с гамма-спектрометрическим оборудованием и специализированным программным обеспечением;
- изучение принципов проведения изотопного анализа урана с помощью гамма-спектрометрических систем со сцинтилляционным и полупроводниковым детекторами.

Для занятия в лаборатории создаются подгруппы студентов не более 3–4 человека, выполняющих работу совместно.

Лабораторные занятия проводятся в три этапа – подготовительный, основной и защита. Подготовительный этап представляет собой самостоятельную работу студентов по изучению теоретического материала, ознакомлению с инструкциями по эксплуатации оборудования и прикладного программного обеспечения. Длительность подготовительного этапа составляет от 4 до 12-ти часов и может варьироваться в зависимости от сложности используемого оборудования, программного обеспечения, а также степени теоретической подготовленности обучающихся.

Основной этап проводится в лаборатории и включает практическую работу студентов с доступным гамма-спектрометрическим оборудованием под руководством преподавателя или инструктора. Длительность основного этапа составляет от двух до восьми часов аудиторных занятий в зависимости от содержания выполняемых работ, сложности используемого оборудования и степени подготовленности обучающихся.

Защита предваряется самостоятельной работой студентов, связанной с обработкой полученных экспериментальных данных, а также подготовкой ответов на контрольные вопросы и задания. Длительность самостоятельной работы составляет 4–8 часов. Защита отдельной группы обучающихся проводится преподавателем и занимает не более 2-часов аудиторного времени.

Содержание лабораторной работы разбито на три части в соответствии с типом используемой гамма-спектрометрической системы (сцинтилляционной или полупроводниковой) и используемым методом измерения. Каждая часть является логически завершенной и может выполняться вне зависимости от других.

Для обработки результатов измерений и расчета погрешностей при выполнении заданий различных частей лабораторной работы могут использоваться стандартные статистические методы анализа результатов измерений и вычислений.

**Часть 1. NS4.6.1. Определение обогащения урана с помощью сцинтилляционного гамма-спектрометра**

*Краткие теоретические сведения*

Методика измерения обогащения урана, основанная на измерении естественного гамма-излучения  $^{235}\text{U}$ , является хорошо разработанным и широко используемым методом неразрушающего анализа.

Исторически первым был разработан метод измерения обогащения, основанный на предположении, что интенсивность гамма-излучения  $^{235}\text{U}$  от образцов урана достаточной толщины пропорциональна их обогащению. Фотоны гамма-излучения с энергией 185,7 кэВ при распадах  $^{235}\text{U}$  испускаются с вероятностью  $(57,5 \pm 0,9)\%$ . Удельная интенсивность излучения фотонов указанной энергии достигает  $4,3 \cdot 10^4$  1/с·г.

Длины свободного пробега и «бесконечные» толщины для фотонов 185,7 кэВ в соединениях урана приведены в табл. 4.25. «Бесконечной» называют толщину слоя вещества равную 7 длинам свободного пробега в нем фотонов гамма-излучения.

Таблица 4.25. Длины свободного пробега и «бесконечные» толщины для фотонов с энергией 185,7 кэВ в соединениях урана

Соединение	Плотность, г/см <sup>3</sup>	Длина свободного пробега, см	Бесконечная толщина, см
Металл	18,7	0,04	0,26
UF <sub>6</sub> (твердый)	4,7	0,20	1,43
UO <sub>2</sub> (спеченный)	10,9	0,07	0,49
UO <sub>2</sub> (порошок)	2,0	0,39	2,75
Нитрат уранила	2,8	0,43	3,04

На рис. л.р.4.15. представлена геометрия измерений обогащения урана по гамма-излучению образца. Детектор регистрирует излучение, прошедшее через фильтр и коллиматор. С помощью коллиматора устанавливается площадь видимой детектором поверхности одинаковой для образцов с разной геометрией. Фильтр поглощает излучение в области энергий ниже 185,7 кэВ, что позволяет разгрузить измерительный тракт, повысить долю сигналов 185,7 кэВ в полном потоке сигналов через тракт и, соответственно, сократить время измерения. Фильтры изготавливают из материалов среднего веса (Cd, Ni и других).

Обычно  $l \gg D$ ,  $l \gg R$ ,  $l \gg r$ . Для заданных условий измеренная скорость счета импульсов в фотопике  $n_p = S_\phi / t$ , где  $S_\phi$  – счет импульсов в фотопике,  $t$  – время измерения определяется следующим выражением:

$$n_p = (\Omega_d / 4\pi) \varepsilon \lambda_{235} (N_A / A_U) \rho_U E I \theta \exp(-\mu_\phi \rho_\phi d_\phi) \exp(-\mu_K \rho_K d_K) \int_0^D \exp(-\mu_l x) dx, \quad (\text{л.ф.4.25})$$

где  $\Omega_d$  – телесный угол, ограниченный отверстием коллиматора;

$\varepsilon$  – эффективность детектора при  $E_\gamma = 185,7$  кэВ;

$\lambda_{235}$  – постоянная распада  $^{235}\text{U}$ ;

$N_A$  – число Авогадро;

$A_U$  – атомная масса урана в образце;

$\rho_U$  – плотность урана в образце;

$E$  – обогащение;

$I$  – квантовый выход (коэффициент ветвления) излучения 185,7 кэВ;

$\theta$  – площадь отверстия коллиматора;

$\mu_\phi$ ,  $\rho_\phi$ ,  $d_\phi$  – массовый коэффициент ослабления, плотность и толщина фильтра;

$\mu_K$ ,  $\rho_K$ ,  $d_K$  – массовый коэффициент ослабления, плотность и толщина стенки контейнера;

$\mu_l$  – коэффициент ослабления гамма-излучения в образце урана.



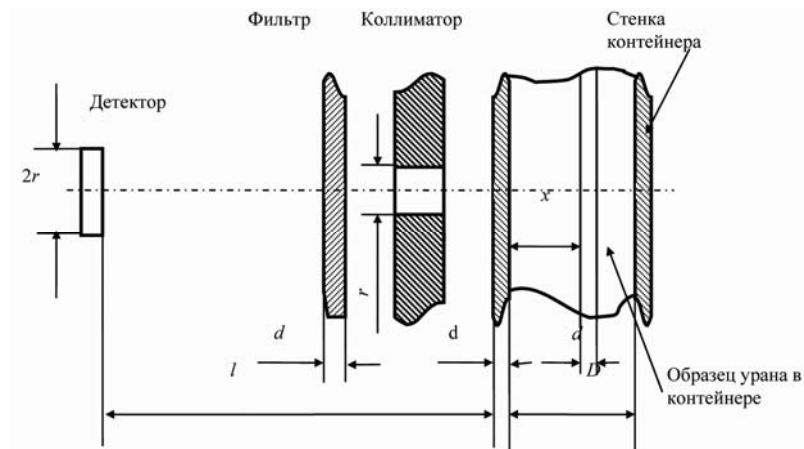


Рис. л.р.4.15. Схема геометрии измерения обогащения урана по  $\gamma$ -излучению образца

После вычисления интеграла и преобразований формула (л.ф.1.25) приводится к следующему виду:

$$n_p = K \frac{ET_K T_\phi (1 - T_{обр.})}{[1 + (\mu_M / \mu_U) \cdot (\rho_M / \rho_U)]}, \quad (\text{л.ф.4.26})$$

где  $K = [(\Omega_d / 4\pi) \varepsilon \lambda_{235} I A_U T_\phi]$ ;

$T_{обр.}$  – коэффициент пропускания для исследуемого образца;

$T_K$  – коэффициент пропускания для стенки контейнера;

$T_\phi$  – коэффициент пропускания фильтра;

$\mu_U, \rho_U$  – массовый коэффициент ослабления и плотность урана;

$\mu_M, \rho_M$  – массовый коэффициент ослабления и плотность матрицы.

Член  $[1 + (\mu_M / \mu_U) \cdot (\rho_M / \rho_U)]$  учитывает разбавление урана в образце другими материалами (кислород, фтор, плутоний и другие). Он зависит от состава измеряемого материала. Для элементов с  $Z < 30$  отношение  $(\mu_M / \mu_U) \leq 0,1$ , а для большинства соединений урана  $(\rho_M / \rho_U) \leq 0,2$ . Таким образом, эта поправка редко бывает больше 1,02.

Все параметры в выражении для  $K$  являются константами в применении к конкретной геометрии измерений. Если они хорошо известны, можно обойтись без использования эталонов. Однако в действительности  $K$  определяют с помощью физического эталона, и его значение становится калибровочным коэффициентом. Таким образом, искомое значение обогащения получают по формуле:

$$E = \frac{n_p [1 + (\mu_M / \mu_U) \cdot (\rho_M / \rho_U)]}{KT_K T_\phi (1 - T_{обр.})}, \quad (\text{л.ф.4.27})$$

где  $(1 - T_{обр.})$ ,  $T_K$ ,  $T_\phi$ ,  $[1 + (\mu_M / \mu_U) \cdot (\rho_M / \rho_U)]$  являются поправками, которые, будучи раз определенными, используются для измерений с любыми образцами с аналогичным составом и в аналогичной упаковке.

Чаще всего измерения обогащения проводились на образцах, для которых  $T_{обр.} = 0$  (бесконечно толстые образцы).  $T_K$  может быть подсчитан с достаточно малой погрешностью, если известен материал и толщина стенки контейнера. Точное значение толщины стенки можно оценить с помощью ультразвукового толщиномера.

В случае измерений образцов, идентичных по составу матрице ядерного материала, материалу и толщине стенки контейнера с использованием одного и того же фильтра, а также при использовании образцов «бесконечной» толщины, определение обогащения может быть выполнено с помощью выражения:

$$E = R n_p, \quad (\text{л.ф.4.28})$$

где  $R$  – калибровочная константа.

Скорость счета  $n_p$  фотонов с энергией 186 кэВ можно измерить с помощью сцинтилляционного спектрометра на основе монокристалла (например, NaI(Tl); см. рис. л.р.4.16). Однако, при измерении на сцинтилляторе скорость счета в диапазоне вокруг пика 186 кэВ зависит не только от концентрации  $^{235}\text{U}$  в образце. Фотопик 186 кэВ расположен на достаточно большой подложке, представляющей континуум спектра комптоновских электронов, возникающих при комптоновском рассеянии фотонов гамма-излучения с энергиями 766 кэВ и 1001 кэВ, образовавшихся в процессе распада  $^{238}\text{U}$ . Следовательно, формула определения обогащения должна учитывать вклад от обоих изотопов:

$$E = An_{Peak} + Bn_{Compton} = An_1 + Bn_2, \quad (\text{л.ф.4.29})$$

где  $n_1$  и  $n_2$ , соответственно, скорости счета в области пика 186 кэВ и в области континуума Комптона немного выше по энергии.

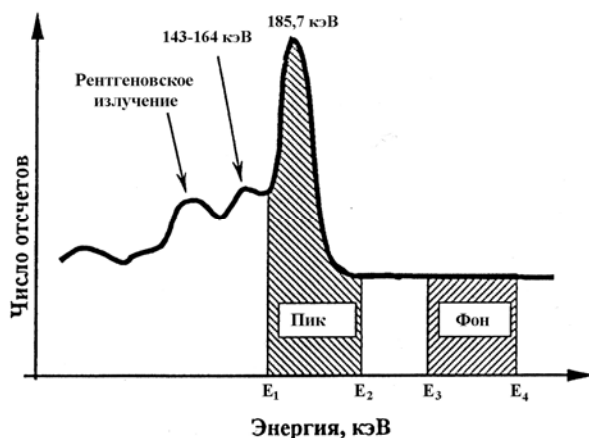


Рис. л.р.4.16. Спектр гамма-излучения урана, измеренный на NaI детекторе

В формуле (л.ф.4.29) присутствуют два неизвестных коэффициента  $A$  и  $B$ , поэтому для их определения требуется измерить два калибровочных эталона с разными концентрациями  $^{235}\text{U}$  и решить систему уравнений:

$$\begin{cases} E_1 = An_{11} + Bn_{12} \\ E_2 = An_{12} + Bn_{22} \end{cases}, \quad (\text{л.ф.4.30})$$

После определения калибровочных коэффициентов с помощью уравнения (л.ф.4.29) можно выполнять определение обогащения для исследуемого образца, аналогичного калибровочным.

**Цель выполнения части 1 лабораторной работы** – приобретение навыков в определении обогащения урана по методу образца «бесконечной» толщины с помощью сцинтилляционного гамма-спектрометра.

**Задания:** работа предполагает выполнение одного задания, являющегося целью выполнения работы.

#### Требования к оборудованию

Для измерений могут использоваться любые гамма-спектрометрические системы как стационарного, так и переносного типа, с неорганическим (например, NaI(Tl)) детектором (см. список рекомендованной литературы). Органические сцинтилляторы не могут использоваться для спектрометрических измерений и служат, обычно, для детектирования нейтронного излучения.

Измерения выполняются с помощью стенда, схема которого представлена на рис. л.р.4.15.

Перед проведением измерений используемый гамма-спектрометрический тракт должен быть калиброван по энергии.

Для измерений и анализа должна использоваться библиотека констант ядерных свойств урана.

#### Объект исследования

В качестве объекта исследования могут использоваться любые идентичные образцы урансодержащих материалов «бесконечной» толщины, упакованные в идентичные контейнеры и экранируемые одинаковым фильтром. Образцы могут быть калибровочными, изготовленными в заводских и лабораторных условиях. Однако для калибровки необходимо иметь не менее двух образцов известного обогащения.

### ПОРЯДОК ВЫПОЛНЕНИЯ ЗАДАНИЯ

1. Ознакомиться с помощью преподавателя/инструктора с составом и назначением элементов измерительного стенда для определения обогащения урана.

2. В соответствии с руководством по эксплуатации подключить измерительную и управляющую системы гамма-спектрометрического тракта к источнику(ам) электрического питания.

3. Ознакомиться с помощью преподавателя/инструктора с рабочим меню программного обеспечения, предназначенного для управления измерительной системой.

4. Поднять напряжение на детекторе до рабочего значения, в соответствии с паспортными характеристиками на сцинтилляционный детектор. Прогреть систему в рабочем режиме в течение рекомендованного промежутка времени.

5. Убедиться в работоспособности системы путем пробного набора фонового спектра за короткий (10–30 с) промежуток времени.

6. Выполнить калибровку гамма-спектрометрической системы по энергии с помощью калибровочных или лабораторных образцов известного изотопного состава.

7. Выполнить набор фонового спектра в течение заданного преподавателем/инструктором промежутка времени.

8. С помощью двух образцов известного обогащения провести калибровку измерительной системы для определения значений  $A$  и  $B$  в системе уравнений (л.ф.4.30). Для этого установить первый из образцов в положение для измерений. Произвести набор спектра в заданный промежуток времени. Вычесть фон из набранного спектра. Время набора определяется статистической погрешностью измерений в области Комптоновского континуума пика 186 кэВ, которая не должна превышать 5%. Определить скорость счета импульсов в области пика 186 кэВ и в области Комптоновского континуума впереди него. Ширина пика и область Комптоновского континуума должны быть выбраны по рекомендации преподавателя/инструктора. Повторить вышеописанную процедуру измерений 3 раза. Рассчитать средние скорости счета в области пика и Комптоновского фона. Результаты измерений и расчетов занести в табл. 4.26.

Заменив первый образец на второй в точке измерений. Повторить серию измерений для второго образца. Результаты измерений и расчетов занести в табл. 4.26.

Таблица 4.26. Результаты калибровочных измерений образцов известного обогащения

Порядковый номер образца	Скорость счета в области, имп./с				
	186 кэВ		Комптоновский континуум		
Образец №1					
Среднее					
Образец №2					
Среднее					

На основании результатов определения средних значений измерений первого и второго образцов определить значения коэффициентов  $A$  и  $B$  в уравнении (л.ф.4.30). Составить уравнение для расчета обогащения неизвестного образца.

9. Установить исследуемый образец с неизвестным обогащением урана в измерительное положение. Провести измерение образца в соответствии с рекомендациями, аналогичными изложенным в п.8 части 1 лабораторной работы. Повторить измерения 3 раза. Определить

среднее значение скорости счета импульсов в области пика 186 кэВ и Комптоновского континуума по результатам пяти измерений. Результаты измерений занести в табл. 4.27.

Таблица 4.27. Результаты измерений образца неизвестного обогащения

Порядковый номер образца	Скорость счета в области, имп./с					
	186 кэВ			Комптоновский континуум		
Образец №1						
Среднее						

Рассчитать с помощью уравнения (л.ф.4.29) значение обогащения для неизвестного образца. Обсудить полученные результаты с преподавателем. При необходимости повторить процедуру калибровки и измерений неизвестного образца.

10. При наличии других образцов неизвестного обогащения повторить с ними процедуру, описанную в п.9 части 1 лабораторной работы.

11. Подготовить отчет о проделанной работе.

### Контрольные вопросы к части 1 NS4.6.1. лабораторной работы №3.

1. Какой пик в спектре излучения урана может использоваться для определения его обогащения с помощью сцинтилляционной гамма-спектрометрической системы?

2. Какой тип сцинтилляционного детектора используется в лабораторной работе? Каковы его основные технические характеристики?

3. Интерференция с пиками каких изотопов может мешать определению обогащения урана с помощью сцинтилляционной гамма-спектрометрической системы?

4. Почему для определения Комптоновского континуума берется область впереди пика 186 кэВ?

5. Какое уравнение и с какими ограничениями может использоваться для определения обогащения урана с помощью сцинтилляционной гамма-спектрометрической системы?

6. Какова точность определения урана, полученная Вами при определении обогащения, и как ее можно повысить?

### Часть 2. NS4.6.2. Определение обогащения урана с помощью полупроводникового детектора высокого разрешения

#### Краткие теоретические сведения

Естественное излучение  $^{235}\text{U}$  с энергией 185,72 может эффективно использоваться для определения обогащения урана с помощью полупроводникового детектора с высоким разрешением (например, HpGe). Энергетическое разрешение германиевого спектрометра настолько высоко, что фотопик с энергией 185,72 кэВ полностью разрешен от соседних фотопиков и между ними имеются ровные участки фона, что значительно облегчает задачу определения площади фотопика и скорости счета  $n_p$ . Таким образом, появляется полноценная возможность использования для расчета обогащения формулы (л.ф.4.26). На результаты анализов по схеме измерений, показанной на рис. л.р.4.15, могут оказать влияние два фактора, не учтенные в указанном уравнении: влияние геометрии и интерференция с другими пиками.

При удалении образца от детектора в отсутствие коллиматора эффективность регистрации излучения будет уменьшаться по закону, близкому к  $1/r^2$ . Использование коллиматора позволяет значительно уменьшить влияние этого фактора, но не устраняет его полностью. Данный эффект проявляется в тех случаях, когда эталон и измеряемый образец отличаются по плотности. Например, если эталоном служил металлический уран, а измеряемый образец изготовлен из двуокиси урана с почти вдвое большей «бесконечной» толщиной, то значительный вклад в измеряемую активность внесут более удаленные от детектора слои образца, чем в случае металлического эталона. Поскольку эффективность регистрации излучения от более удаленных от детектора областей образца оказывается заниженной, то измеренное обогащение также окажется меньше истинного. Чем меньше диаметр отверстия коллиматора, тем ближе реальная геометрия измерения к идеальной одномерной модели и тем меньшее влияние оказывает эффект  $1/r^2$  на результаты измерений.

Еще одна систематическая погрешность, имеющая место при определении обогащения – это интерференция гамма-излучения с энергией 185,72 кэВ от  $^{235}\text{U}$  с гамма-излучением продуктов распада от  $^{238}\text{U}$  с энергией 186 кэВ. Однако при хорошем разрешении вклад этого

излучения в измеряемый фотопик 185,72 КэВ для естественного урана составляет всего 0,1% и становится пренебрежимо малым при увеличении обогащения. Соответственно, для сильно обедненных образцов вклад от излучения  $^{238}\text{U}$  следует учитывать.

**Цель выполнения части 2 NS4.6.2. лабораторной работы** – приобретение навыков в определении обогащения урана по методу образца «бесконечной» толщины с помощью полупроводникового гамма-спектрометра высокого разрешения.

**Задания:** работа предполагает выполнение одного задания, являющегося целью выполнения работы.

#### **Требования к оборудованию**

Для измерений могут использоваться любые гамма-спектрометрические системы (см. список рекомендованной литературы) как стационарного, так и переносного типа, с полупроводниковыми детекторами высокого разрешения (например,  $\text{HrGe}$ ).

Измерения выполняются с помощью стенда, схема которого представлена на рис. л.р.4.15.

Перед проведением измерений используемый гамма-спектрометрический тракт должен быть калиброван по энергии.

Для измерений и анализа должна использоваться библиотека констант ядерных свойств урана.

#### **Объект исследования**

В качестве объекта исследования могут использоваться любые образцы урансодержащих материалов разной толщины, упакованные в контейнеры и экранируемые фильтрами. Однако для повышения точности измерений рекомендуется использовать, по возможности, идентичные образцы и условия измерений.

Образцы могут быть калибровочными, изготовленными в заводских и лабораторных условиях. Для калибровки системы достаточно иметь один образец известного обогащения.

### **ПОРЯДОК ВЫПОЛНЕНИЯ ЗАДАНИЯ**

1. Ознакомиться с помощью преподавателя/инструктора с составом и назначением элементов измерительного стенда для определения обогащения урана.

2. В соответствии с руководством по эксплуатации, подключить измерительную и управляющую системы гамма-спектрометрического тракта к источнику(ам) электрического питания.

3. Ознакомиться с помощью преподавателя/инструктора с рабочим меню программного обеспечения, предназначенного для управления измерительной системой.

4. Поднять напряжение на детекторе до рабочего значения, в соответствии с паспортными характеристиками на сцинтилляционный детектор. Прогреть систему в рабочем режиме в течение рекомендованного промежутка времени.

5. Убедиться в работоспособности системы путем пробного набора фонового спектра за короткий (10–30 с) промежуток времени.

6. Выполнить калибровку гамма-спектрометрической системы по энергии с помощью калибровочных или лабораторных образцов известного изотопного состава.

7. Выполнить набор фонового спектра в течение заданного преподавателем/инструктором промежутка времени.

8. Выполнить калибровку измерительной системы с помощью образца урана с известным обогащением.

*Таблица 4.28. Результаты измерений образцов*

Тип образца	Скорость счета в области 185,72 кэВ, имп./с		
Калибровочный			
Среднее			
Изменяемый №1			

Для этого установить образец в положение для измерений. Произвести набор спектра в заданный промежуток времени. Вычесть фон из набранного спектра. Время набора определяется статистической погрешностью измерений в области пика полного фотоэлектрического поглощения с энергией 185,72 кэВ, которая не должна превышать 5%.

Определить скорость счета импульсов в области пика 185,72 кэВ. Повторить вышеописанную процедуру измерений 3 раз. Рассчитать среднее значение скорости счета в области исследуемого пика. Результаты измерений и расчетов занести в табл. 4.28.

9. Установить исследуемый образец с неизвестным обогащением урана в измерительное положение. Провести измерение образца в соответствии с рекомендациями, аналогичными изложенным в п.8 части 2 лабораторной работы. Повторить измерения 3 раза. Определить среднее значение скорости счета импульсов в области пика 185,72 кэВ по результатам пяти измерений. Результаты измерений занести в табл. 4.28.

10. Рассчитать с помощью уравнения (л.ф.4.26) значение обогащения для образца с неизвестным значением обогащения. Обсудить полученные результаты с преподавателем. При необходимости повторить процедуру калибровки и измерений неизвестного образца.

11. При наличии других образцов неизвестного обогащения повторить с ними процедуру, описанную в п.9, 10 части 2 лабораторной работы.

12. Подготовить отчет о проделанной работе.

### **Контрольные вопросы к части 2 NS4.6.2. лабораторной работы №3.**

1. Какой тип полупроводникового детектора используется в лабораторной работе? Каковы его основные технические характеристики?

2. В чем преимущество использования полупроводниковых детекторов по сравнению со сцинтилляционными?

3. Какое уравнение и с какими ограничениями может использоваться для определения обогащения урана с помощью полупроводниковой гамма–спектрометрической системы?

4. В чем отличие методических подходов для определения обогащения с помощью сцинтилляционного и полупроводникового детекторов?

5. Какова точность определения урана, полученная вами при определении обогащения и как ее можно повысить?

### **Контрольные вопросы к части 1 NS4.6.1. и 2 NS4.6.2. лабораторной работы №3.**

1. Что такое обогащение? Какие единицы обогащения вы знаете и как они связаны между собой?

2. Какие основные линии излучения изотопов урана вам известны?

3. Какую толщину образца называют «бесконечной»?

4. Какова бесконечная толщина материала для металлического урана и его двуокиси?

5. В чем заключается метод использования «бесконечных» образцов для определения обогащения урана?

6. Какова схема измерений, позволяющая эффективно реализовать метод «бесконечных» образцов на практике?

7. Какое уравнение наиболее полно отвечает методу «бесконечных образцов»?

8. В чем смысл и особенности поправочного коэффициента на конечную толщину образца для различных урансодержащих материалов?

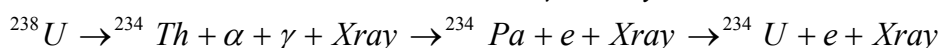
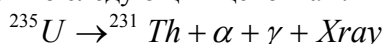
9. В чем смысл и особенности поправочного коэффициента на поглощение в стенке контейнера?

10. В чем смысл и особенности поправочного коэффициента на химический состав матрицы измеряемого материала?

### **Часть 3. NS4.6.3. Определение обогащения урана с помощью метода изотопных отношений (относительной эффективности)**

#### *Краткие теоретические сведения*

В спектре излучения уранового образца имеется большое количество фотопиков гамма– и рентгеновского излучения урана. Это излучение возникает в процессе распада  $^{235}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$  и их дочерних продуктов по следующим цепочкам:



Измеренное отношение площадей соответствующих фотопиков позволяет рассчитать соотношение между концентрациями изотопов по формуле:

$$N^i / N^k = S^i / S^k \cdot T_{1/2}^i / T_{1/2}^k \cdot I_{\gamma}^k / I_{\gamma}^i \cdot \epsilon_{\gamma}^k / \epsilon_{\gamma}^i, \quad (\text{л.ф.4.31})$$

где  $N^i$  – число атомов  $i$ -го изотопа в образце;  $S^i$  – площадь фотопика от  $i$ -го изотопа;  $T_{1/2}^i$  – период полураспада  $i$ -го изотопа;  $I_\gamma^i$  – квантовый выход излучения, регистрируемого в фотопике  $S^i$ ;  $\varepsilon_\gamma^i$  – эффективность регистрации излучения в фотопике  $S^i$ .

Величины  $I_\gamma^i$  известны для каждой группы квантов излучения уранового образца. Также известны и отношения интенсивностей рентгеновского излучения этих изотопов в отсутствии поглощения, поэтому отношение измеренных в реальной геометрии интенсивностей, то есть площадей фотопиков, дает возможность аккуратно скорректировать ослабление излучения в образцах и различие в эффективностях регистрации фотонов гамма-излучения различных энергий. Поскольку различие в энергии небольшое, то и поправки тоже небольшие, и могут быть определены с высокой точностью.

Основная трудность данной методики состоит в корректном определении площадей, близко расположенных и перекрывающихся друг друга фотопиков; определении относительной эффективности регистрации пиков, имеющих большую разницу в амплитуде, а также отстоящих друг от друга на большом расстоянии (по шкале энергии).

Зная соотношения между изотопами  $^{234}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$  и  $^{238}\text{U}$ , можно рассчитать обогащение уранового образца по формуле:

$$E = {}^{235}\text{U} / ({}^{235}\text{U} + {}^{234}\text{U} + {}^{238}\text{U}). \quad (\text{л.ф.4.32})$$

Для определения изотопного состава ядерных материалов с помощью метода относительной эффективности были разработаны и получили наибольшее распространение в качестве инструмента неразрушающего анализа два расчетных кода – MGA/MGAU(MGA++) и FRAM. Обе программы предназначены для определения изотопного состава урана, плутония, а также их смеси в любых химических соединениях.

#### *Расчетный код MGAU*

Методика расчета, использованная в этой программе, не предполагает использование эталона для калибровки по эффективности спектра излучения образца. Измерение обогащения проводится в диапазоне энергии 84–130 кэВ. Основное ограничение на применение данного метода обусловлено относительно слабой проникающей способностью измеряемых излучений. Основная трудность работы в диапазоне 84–130 кэВ – близость измеряемых излучений по энергиям – в настоящее время преодолевается путем применения LeGe-детекторов с высоким разрешением.

Область 84–130 кэВ включает ряд  $\gamma$ - и  $XK$ -линий изотопов урана. Излучения  $^{235}\text{U}$  и  $^{238}\text{U}$  в этой области очень близки по энергии, и поэтому регистрируются почти с равной эффективностью.

Скорость счета  $n_p^i$  и концентрация  $i$ -го изотопа в уравнении (л.ф.1.31) соотносятся следующим образом:

$$\frac{n_p^i}{I_\gamma^i} = \left( \frac{N^i \cdot \ln 2}{T_{1/2}^i} \right) \cdot \varepsilon_\gamma^i \quad (\text{л.ф.4.33})$$

Член в скобках имеет одинаковое значение для всех гамма-излучений, испускаемых одним изотопом. Поэтому отношение  $(n_p^i / I_\gamma^i)$  пропорционально эффективности  $\varepsilon_\gamma^i$ .

Процедура измерений относительной эффективности включает:

- определение скоростей счета  $n_p^i$  в ряде пиков, принадлежащих одному изотопу, и вычисление значений  $n_p^i / I_\gamma^i$ , характеризующих эффективность  $\varepsilon_\gamma^i$ . Величины  $I_\gamma^i$  известны для каждой группы фотонов, образующих эти пики  $S_i$ ;

- полученные значения  $\varepsilon_{\gamma}^i$  для ряда пиков используют для построения зависимости  $\varepsilon_{\gamma}$  от  $E_{\gamma}$ . Кривые  $\varepsilon_{\gamma}(E)$  для излучений разных нуклидов имеют одинаковую форму, различны лишь масштабные коэффициенты ( $N^i \cdot \ln 2 / T_{1/2}^i$ ).

Учет изменений относительной эффективности тем важнее, чем сильнее различаются энергии гамма-линий, используемых для определения изотопного соотношения.

Особенность задачи разложения спектра состоит в том, что гамма- и рентгеновские пики имеют разную форму (и требуются разные модели для их описания). Многие из этих пиков принадлежат не  $^{235}\text{U}$  и  $^{238}\text{U}$ , а их дочерним продуктам.

Хорошее разрешение необходимо для обеспечения высокой точности определения изотопного состава. С другой стороны, для сокращения расхода времени на анализ, целесообразно увеличивать рабочую поверхность (и светосилу) детектора. Для анализа подобного рода обычно используется U-Pu InSpector с LeGe-детектором площадью  $5\text{ см}^2$ , который обладает разрешением 550–600 эВ для энергии 122 кэВ при загрузке 5000 имп/с. Для выполнения анализа большинства образцов с приемлемой точностью требуется 600–1000 сек.

Для определения относительного содержания  $^{235}\text{U}$  используют рентгеновские пики 89,95 кэВ (Th  $\text{XK}_{\alpha 2}$ ) и 93,35 кэВ (Th  $\text{XK}_{\alpha 1}$ ), а для  $^{238}\text{U}$  – дуплет перекрывающихся гамма-пиков 92,37 кэВ и 92,79 кэВ ( $^{234}\text{Th}$ ). Рентгеновские пики 89,95 кэВ и 93,35 кэВ распада  $^{235}\text{U}$  и гамма-дуплет 92,37 кэВ и 92,79 кэВ  $^{238}\text{U}$  очень близки по энергиям, поэтому и относительные эффективности их регистрации также мало различаются (требуется только малые поправки на различия, которые получаются из сравнения интенсивностей измеренных  $\text{XK}_{\alpha 2}$  и  $\text{XK}_{\alpha 1}$  пиков урана с энергией 94,65 кэВ и 98,43 кэВ, соответственно). Пики 98,4 кэВ и 185,7 кэВ используются для градуировки шкалы энергии и определения реальной формы рентгеновских и гамма-пиков в полученных спектрах.

Содержание  $^{234}\text{U}$  определяется по гамма-линии 121 кэВ. Измерения производятся на спектрометрах с разрешением не хуже 700 эВ для гамма-излучения 122 кэВ  $^{57}\text{Co}$ . Погрешность определения обогащения составляет не более нескольких процентов для образцов урана в диапазоне обогащений от обедненного до высокообогащенного (от 0,3 % до 93 %  $^{235}\text{U}$ ). Вблизи границ этого интервала погрешности возрастают. Наилучшие результаты могут быть получены для образцов с 10 %-ным обогащением, когда амплитуды пиков, характеризующих содержание  $^{235}\text{U}$  и  $^{238}\text{U}$ , одинаковые.

Ограничения метода:

- гамма-дуплет 92,37 кэВ и 92,79 кэВ, используемый для определения относительного содержания  $^{238}\text{U}$ , принадлежит  $^{234}\text{Th}$  – продукту  $\alpha$ -распада  $^{238}\text{U}$ . Поэтому дочерний  $^{234}\text{Th}$  в образце должен быть в равновесии с материнским  $^{238}\text{U}$ , которое наступает лишь, приблизительно, через 5 месяцев после химического выделения урана;
- толщина стенок контейнера влияет на точность анализа (16 мм стенка стального контейнера с  $\text{UF}_6$  ослабляет излучение 90–100 кэВ приблизительно в 250 раз);
- широко распространенные анализы с помощью программы MGAU основаны на измерениях мягкого излучения и не подходят для контроля защищенных образцов. При экранировании излучателя фотонов необходим другой подход.

*Расчетный код FRAM*

В настоящее время развиты методы определения обогащения урана, основанные на измерениях с коаксиальным Ge-детектором в более жестком диапазоне энергии, включающем излучения  $^{235}\text{U}$  (185,7 кэВ, 205,3 кэВ и другие) и  $^{238}\text{U}$  (766,4 кэВ, 1001 кэВ и другие), и построении кривой относительной эффективности для этого диапазона. Такие методы дают возможность проводить измерения образцов в контейнерах. Необходимость использования экранирующего материала также может быть обусловлена необходимостью измерения ЯМ в помещениях, где присутствуют посторонние излучатели, которые загружают измерительную систему и мешают наблюдениям. В этом случае требуется снизить фон либо путем улучшения характеристик измерительной системы (повышение разрешения и других), либо с помощью защиты детектора. Для этого используют пассивную, активную и комбинированную защиты. Пассивная защита – экраны из различных материалов. Для защиты от жесткого гамма-излучения используют экраны из материалов с большим  $Z$  (обычно Pb). При поглощении фотонов гамма-излучения в Pb образуются фотоэлектроны, которые возбуждают тормозное и



характеристическое рентгеновское излучение Pb. Для защиты от вторичного излучения используются многослойные экраны из материалов с большим, средним и малым  $Z$ .

Сведения об энергетическом спектре изотопов урана, который используется в программе FRAM для анализа, представлены в табл. 4.29.

Таблица 4.29. Энергетические линии излучения урана, используемые в программе FRAM

$^{234}\text{U}$		$^{235}\text{U}$		$^{236}\text{U}$		$^{238}\text{U}$	
$E_{\gamma}$ , кэВ	$\gamma/\text{с}\cdot\text{г}$	$E_{\gamma}$ , кэВ	$\gamma/\text{с}\cdot\text{г}$	$E_{\gamma}$ , кэВ	$\gamma/\text{с}\cdot\text{г}$	$E_{\gamma}$ , кэВ	$\gamma/\text{с}\cdot\text{г}$
120,9	$9,44\cdot 10^4$	143,8	$7,8\cdot 10^3$			258,4	5,2
		163,4	$3,7\cdot 10^3$			742,8	7,1
		185,7	$4,3\cdot 10^4$			766,4	60
		195,0	$4,7\cdot 10^2$			786,3	4,3
		202,1	$8,0\cdot 10^2$			880,5	1,6
		205,3	$3,76\cdot 10^3$			883,2	1,6
						946,0	2,5
						1001	50

Анализ приведенных в табл. 4.29 данных об излучениях изотопов урана позволяет сделать следующие выводы:

- гамма-линии  $^{235}\text{U}$  и  $^{238}\text{U}$  располагаются в разных областях энергии, что затрудняет определение относительной эффективности их регистрации методом самокалибровки;
- отсутствует гамма-излучение  $^{236}\text{U}$ , что не позволяет использовать гамма-спектрометрию для контроля содержания этого изотопа, которое в регенерированном уране может составлять несколько процентов;
- $^{234}\text{U}$  представлен лишь одной, довольно мягкой линией.

Перечисленные факторы сужают возможности контроля изотопного состава урана рассматриваемым методом.

Гамма-излучение, которое приписывают  $^{238}\text{U}$ , фактически возникает в результате распада  $^{234\text{m}}\text{Pa}$ , дочернего изотопа с периодом полураспада равным 24 дням. Поэтому измерения, проведенные ранее, чем через 100 дней после химической очистки образцов урана, то есть до достижения равновесия между  $^{238}\text{U}$  и  $^{234\text{m}}\text{Pa}$ , неточны.

В регенерированном уране содержится  $^{232}\text{U}$ , который с периодом полураспада 68,9 лет распадается в  $^{228}\text{Th}$ . Гамма-линии  $^{228}\text{Th}$  с энергиями 238, 583, 727 и 860 кэВ могут наблюдаться в спектре и их можно использовать для построения кривой относительной эффективности.

В программе FRAM для анализа изотопного состава урана реализованы два разных подхода к построению кривой относительной эффективности. В одном случае для сшивки низкоэнергетического диапазона, в котором присутствуют линии  $^{235}\text{U}$ , и высокоэнергетического, содержащего линии  $^{238}\text{U}$  ( $^{234\text{m}}\text{Pa}$ ), используют гамма-линию  $^{238}\text{U}$  с энергией 258,4 кэВ. Такой подход применим для анализа образцов низкообогащенного урана. В спектрах высокообогащенных образцов гамма-линия  $^{238}\text{U}$  с энергией 258,4 кэВ слишком слаба и маскируется фоном. Для построения кривой эффективности в этом случае используют  $\gamma$ -линии  $^{228}\text{Th}$ . В соответствии с вышеизложенным, в программе FRAM предлагаются два набора параметров для анализа соотношения  $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$  в урановых образцах низкого и высокого обогащения.

Погрешность анализа оценивают по результатам ряда повторных измерений эталонов. Было продемонстрировано, что применение FRAM дает возможность успешно измерять низкообогащенный уран через 15-миллиметровый слой стали.

Роль эталонов при гамма-спектрометрических измерениях изотопного состава U существенно отличается от их роли в других методах неразрушающего контроля. При гамма-спектрометрии искомые значения получают, используя известные физические константы (периоды полураспада нуклидов, квантовые выходы излучений) и результаты самокалибровки. Тем не менее, эталоны имеют большое значение для контроля качества измерений этим методом. Только с помощью эталонов можно установить, что полученные результаты имеют нужное качество, и оценить их погрешности.

Измерения с HpGe-детекторами и обработкой спектров с помощью программы FRAM использовались для контроля равномерности распределения Pu и U в порошках и таблетках

МОХ-топлива. Был обнаружен лишь один недостаток выбранного метода – большая продолжительность измерения. Для определения отношения  $^{239}\text{Pu}/^{235}\text{U}$  с погрешностью 1,5 % ( $P=0,95$ ) потребовалось провести измерение длительностью 6–8 часов.

Первая стадия анализа с помощью программы FRAM схожа с MGAU – внутренняя калибровка. Определяются зависимости канал/энергия, ПППВ/энергия, форма пика/энергия, причем используются специально выбранные пики в измеренном спектре. Для внутренней калибровки служат те же спектры, которые далее анализируются. Определяется фон в области каждого пика. Для нахождения фона используют участки спектра, где пики отсутствуют. Счет в отдельных каналах на этих участках служит для построения фоновой функции. Пользователь может выбрать одну из восьми функций для описания фона: линейную, квадратичную, экспоненциальную и другие. Затем определяется ПППВ отдельных пиков. Пики, которые предназначаются для нахождения «хвостовых» коэффициентов, задаются в наборе параметров. Для каждого из этих пиков определяется его гауссова часть с использованием ранее полученных данных о ПППВ. Затем эта часть вычитается из канальных отсчетов. Далее модель «хвоста» подгоняют к полученным результатам с помощью метода наименьших квадратов (см. рис. 4.5.14).

На второй стадии анализа для каждого анализируемого диапазона оценивается сплошной фон, создаются функции отклика и эти функции подгоняются к «чистому» счету. Затем определяются площади под пиками, которые используются для построения функций относительной эффективности в диапазоне измерений спектра.

Кривая относительной эффективности имеет вид:

$$\ln \varepsilon = C_1 + C_2 E^{-2} + C_3 (\ln E) + C_4 (\ln E)^2 + C_5 (\ln E)^3 + C_i + C_j E^{-1}, \quad (\text{л.ф.4.33})$$

где  $C_i$  – нормировочные коэффициенты для всех изотопов кроме первого;

$C_j$  – нормировочный коэффициент для различных кривых относительной эффективности, построенных по пикам разных изотопов, кроме первой;

$E$  – энергия (МэВ).

Относительная эффективность может быть получена из результатов измерений гамма-излучения. С учетом относительной эффективности оцениваются относительные активности отдельных изотопов и определяется состав изотопной композиции.

Таким образом, проведение анализа изотопного состава урана с помощью FRAM, имеет ряд особенностей и недостатков:

– наиболее интенсивные линии  $^{235}\text{U}$  в низкоэнергетической части спектра 100–200 кэВ, а  $^{238}\text{U}$  в высокоэнергетической 700–1000 кэВ. Поэтому построение единой функции относительной эффективности для всего диапазона измерений затруднено;

– квантовые выходы излучений  $^{238}\text{U}$ , используемые в анализе, очень малы, а период полураспада велик ( $4,47 \cdot 10^9$  лет). Поэтому для обеспечения удовлетворительной точности могут потребоваться длительные измерения;

– изотоп  $^{234}\text{U}$  накапливается в уране по мере увеличения обогащения, а его относительная концентрация может достигать 1,5–2,0 % в высокообогащенном уране. В этих случаях необходимо учитывать содержание  $^{234}\text{U}$  в анализируемых образцах. Данные о концентрации  $^{234}\text{U}$  получают путем определения относительной интенсивности  $\gamma$ -линии 120,9 кэВ в спектре уранового образца, которая может сильно ослабляться материалом контейнера;

– как уже упоминалось, при изготовлении ТВС современных энергетических реакторов может использоваться регенерированный (то есть выделенный из облученного топлива) уран. Во время предыдущих облучений в нем по механизму реакции  $^{235}\text{U}(n, \gamma)$  накапливается  $^{236}\text{U}$  – четно-четный пороговый нуклид. Его относительная концентрация может превышать 1 %. В этом случае его присутствие нужно учитывать. Однако его слабое и мягкое гамма-излучение трудно поддается измерениям, и FRAM не дает информации о нем. Соответствующие поправки на наличие  $^{236}\text{U}$  могут быть сделаны расчетным путем или по результатам других видов анализов;

– в регенерированном уране содержится также  $^{232}\text{U}$ , который с периодом 68,9 лет распадается в  $^{228}\text{Th}$ . Гамма-линии  $^{228}\text{Th}$  с энергиями 238, 583, 727 и 860 кэВ могут наблюдаться в спектре, и их можно использовать для построения кривой относительной эффективности.

Несмотря на перечисленные недостатки, программа FRAM характеризуется следующими очевидными достоинствами:

– возможностью анализа материалов в контейнерах или в других конфигурациях, когда излучение экранируется защитой от гамма-излучения;

– легкой приспособляемостью к условиям различных измерений без необходимости перепрограммирования;

– возможностью для пользователя редактировать параметры анализа, что позволяет добиваться хороших результатов в сложных случаях.

**Цель выполнения части 3 NS4.6.3. лабораторной работы** – приобретение навыков в определении обогащения урана по методу соотношения пиков полного поглощения.

**Задания:** работа предполагает выполнение двух заданий, отличающихся типом используемого оборудования и расчетного кода (MGAU/MGA++, FRAM). Задания независимы друг от друга и могут выполняться по отдельности, в зависимости от наличия доступного лабораторного оборудования и программного обеспечения.

Задание 1: определение изотопного состава образцов урана с помощью гамма-спектрометрической системы на основе LeGe детектора, управляемой программой MGAU/MGA++.

Задание 2: определение изотопного состава образцов урана с помощью гамма-спектрометрической системы на основе HpGe детектора, управляемой программы FRAM.

#### **Требования к оборудованию**

В зависимости от типа выполняемого задания в лабораторной работе могут использоваться гамма-спектрометрические системы с LeGe или HpGe, а также обе измерительные системы.

Для измерения лабораторных образцов обычно не требуется специальных стенов. Однако использование какого-либо устройства, фиксирующего положение образца относительно детектора, является желательным.

#### **Объект исследования**

В качестве объекта исследования могут использоваться любые образцы урансодержащих материалов разной толщины, упакованные в контейнеры и экранируемые фильтрами (толщина стенки контейнера для использования программ MGAU/MGA++ ограничивается 2 мм). Для повышения точности измерений рекомендуется использовать, по возможности, идентичные образцы и условия измерений.

Используемые образцы с различным содержанием урана могут быть образцовыми, специально изготовленными в заводских и лабораторных условиях для калибровки и проведения анализа изотопного состава урана. Для калибровки системы достаточно иметь один образец известного обогащения.

**Описание задания 1.** Определение изотопного состава образцов урана с помощью гамма-спектрометрической системы на основе LeGe детектора, управляемой программой MGAU/MGA++.

Анализ изотопного состава урановых образцов выполняется гамма-спектрометрической системой с LeGe детектором и управляющим кодом MGAU/MGA++ в автоматическом режиме и не требует от оператора больших навыков в эксплуатации. Однако, прежде чем приступить к измерениям, система должна быть настроена и калибрована.

Для уверенной работы кодов, ширина измерительного канала устанавливается равной 75 эВ при общем числе каналов анализатора 4092. Известно, что уран имеет интенсивный пик с энергией 185,72. Произведя расчет  $185,72/0,075$ , получают номер канала, в котором данный пик должен находиться – 2476. Положение пика в спектре устанавливается с помощью регулировки коэффициента усиления. В используемом программном обеспечении усиление имеет три уровня регулирования – грубый, тонкий и сверхтонкий. Для настройки энергетической шкалы рекомендуется воспользоваться образцом урана с обогащением ~ 3,5 %.

После настройки ширины канала рекомендуется отрегулировать базовый уровень с помощью регулирования схемы «полюс–ноль». Управление схемой «полюс–ноль» встроено в программное обеспечение.

Энергетическая калибровка детектора выполняется специальной подпрограммой имеющей файл сертификата. Положение пиков в спектре переносится в файл сертификата, после чего калибровка выполняется автоматически, а ее результаты отображаются на экране компьютера.

В блоке детектирования LeGe детектора, используемого для анализа изотопного состава ядерных материалов с помощью кода MGAU/MGA++, применяется защита из материалов с

высоким порядковым номером  $Z$ , закрывающая кристалл Ge со всех сторон, кроме рабочего окна. Кроме того, в передней части блока детектирования установлен коллиматор диаметром 25 мм. Так как при многогрупповом анализе рентгеновское излучение материалов с высоким  $Z$  может интерферировать со спектром урана и плутония, внутренняя часть защиты покрыта поглотителем с малым  $Z$ . Такая защита снижает интенсивность гамма-фона в анализируемой области 100 кэВ на 23 порядка. В области энергий  $\sim 200$  кэВ ослабление меньше и составляет 4 порядка. Несмотря на выше перечисленные меры защиты детектора от фонового излучения, измерения не рекомендуется проводить в помещениях, уровень фона в которых превышает 100 мкР/час.

Блок детектирования комплектуется дополнительным коллиматором с селективными фильтрами. Дополнительный коллиматор применяется для снижения активной поверхности детектора с 5 до 0,8 см<sup>2</sup>. Это необходимо, в первую очередь, для уменьшения загрузки спектрометрического тракта при измерении материалов с высокой активностью. Применение дополнительного коллиматора расширяет динамический диапазон и снижает мертвое время системы. Селективный фильтр используется для подавления пика <sup>241</sup>Am и поэтому при измерениях урана не используется.

Необходимо подготовить рабочее место для выполнения измерений. В частности, во время измерений должно быть исключено воздействие прямого потока фотонов гамма-излучения на детектор от присутствующих в помещении ЯМ и радиоактивных источников. Для снижения интенсивности фонового излучения применяются дополнительные экраны из тяжелых металлов. Желательно внутреннюю сторону защиты, обращенную к детектору, закрыть легким материалом (железо, медь) толщиной 0,5–1 мм для ослабления рентгеновского излучения, возбуждаемого в свинце.

Необходимо проверить материал контейнера (упаковки) образца. Программное обеспечение не будет функционировать, если толщина оболочки контейнера из стали превысит 5 мм (свинца – 0,3 мм).

Перед анализом ЯМ нужно выполнить контрольное измерение для оценки загрузки анализатора и выбора оптимальной геометрии детектор–образец. Загрузка контролируется по индикатору «Мертвое время» и должна составлять 20–30 %. Если мертвое время меньше 20 %, то для получения приемлемой погрешности анализа потребуются увеличение времени измерений. В случае, если мертвое время больше 30 %, следует уменьшить загрузку системы. Снижать загрузку измерительного тракта следует следующими способами:

- выбором оптимальной геометрии измерений детектор-образец, увеличивая расстояние между ними. При этом образец должен оставаться в поле видимости детектора;
- применением дополнительного коллиматора, снижающим интенсивность излучения в 6 раз.

Для корректной работы кодов MGAU/MGA++ в спектре должны присутствовать линии 98,44 кэВ и 185,72 кэВ, которые излучаются всеми урановыми образцами. Если эти пики не обнаружены или не превышают порога чувствительности, то программа выдает системное сообщение о невозможности обработать спектр. Поэтому, в частности, образцы с обогащением 90 % не могут использоваться для калибровки гамма-спектрометрической системы.

Коды MGAU/MGA++ не требуют градуировки по эффективности и обеспечивают определение изотопного состава урановых образцов с точностью 1–3 % за несколько минут. Наилучшие результаты получаются при анализе образцов с обогащением по <sup>235</sup>U до 40 %. При анализе высокообогащенного и низкообогащенного урана погрешность определения изотопного состава возрастает примерно в 2–3 раза. При выполнении анализа должно соблюдаться условие радиоактивного равновесия дочернего <sup>234</sup>Th и материнского <sup>238</sup>U.

Для получения приемлемых результатов анализа необходимо обеспечить полный счет во всей области энергий не менее  $5 \cdot 10^6$  импульсов. Таким образом, величина полного счета должна определять продолжительность измерения. Для этого в программном обеспечении существует специальный режим в меню «Установка параметров измерения образца» – «Число импульсов». При использовании этого режима программа автоматически остановит набор спектра при достижении заданного количества импульсов в наборе. Это полезно при тщательной проверке отдельных образцов и при контроле систематической ошибки системы. Предоставляется возможность выполнять повторяющиеся измерения, сравнивать результаты и вычислять стандартное отклонение.

Программным обеспечением может также осуществляться функция автоматического повтора измерений (опция «Число прогонов») одной и той же пробы или длительного прогона с возможностью получения результата в любой момент времени (опция «Прогоны с накоплением»).

### ПОРЯДОК ВЫПОЛНЕНИЯ ЗАДАНИЯ

1. Ознакомиться с помощью преподавателя/инструктора с составом и назначением элементов измерительной системы для определения обогащения урана.

2. В соответствии с руководством по эксплуатации, подключить измерительную и управляющую системы гамма-спектрометрического тракта к источнику(ам) электрического питания.

3. Ознакомиться с помощью преподавателя/инструктора с рабочим меню программного обеспечения, предназначенного для управления измерительной системой.

4. Поднять напряжение на детекторе до рабочего значения, в соответствии с паспортными характеристиками на детектор. Прогреть систему в рабочем режиме в течение рекомендованного промежутка времени.

5. Убедиться в работоспособности системы путем пробного набора фонового спектра за короткий (10–30 с) промежуток времени.

6. Выполнить с помощью преподавателя/инструктора настройку гамма-спектрометрического тракта и его энергетическую калибровку.

7. Подобрать с помощью преподавателя оптимальную геометрию и время измерения исследуемых образцов урана.

8. С помощью преподавателя/инструктора выполнить настройку меню, связанных с проведением измерений.

9. Выполнить набор фонового спектра в течение заданного преподавателем/инструктором промежутка времени.

10. В соответствии с принятыми настройками системы и выбранной геометрией выполнить измерение обогащения лабораторных образцов урана. Результаты измерений занести в табл. 4.30.

Таблица 4.30. Результаты определения обогащения лабораторных образцов урана

Номер образца					
Обогащение					
Погрешность измерения					

11. Для образца с известным обогащением, произвести оценку влияния загрузки спектрометрического тракта на результаты анализа. Для этого выполнить несколько измерений, изменяя величину мертвого времени при одном и том же общем времени. Результаты измерений занести в табл. 4.31.

Таблица 4.31. Влияние загрузки спектрометрического тракта на результаты анализа

Наимен. образца	Мертвое время, %	Содержание $^{235}\text{U}$		Содержание $^{238}\text{U}$	
		Измеренное	паспортное	Измеренное	паспортное

12. Для образца с известным обогащением, произвести оценку влияния защитного экрана на результаты анализа. Использовать для защиты пластины из доступного материала – железа, алюминия. Результаты измерений занести в табл. 4.32.

Таблица 4.32. Влияние защитного экрана на результаты анализа

Наимен. образца	Материал защиты	Толщина защитного экрана, мм	Содержание $^{235}\text{U}$		Содержание $^{238}\text{U}$	
			измеренное	паспортное	измеренное	паспортное

13. Обсудить результаты измерений с преподавателем/инструктором.
14. Подготовить отчет о проделанной работе.

### **Контрольные вопросы к заданию 1 части 3 NS4.6.3. лабораторной работы №3.**

1. Какой энергетический диапазон используется для анализа изотопного состава урана в программах MGAU/MGA++?
2. Какой тип детектора и почему используется для анализа изотопного состава урана с помощью программ MGAU/MGA++?
3. Какие пики используются для анализа  $^{235}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$ , и  $^{234}\text{U}$  в расчетных кодах MGAU/MGA++?
4. Какими функциями аппроксимируется форма рентгеновских- и гамма- пиков в расчетных кодах MGAU/MGA++?
5. Какие ограничения по использованию расчетных кодов MGAU/MGA++ вы знаете?
6. Какая ширина измерительного канала при общем числе каналов анализатора 4092 должна быть установлена в программах MGAU/MGA++?
7. Какие требования предъявляются к помещению для выполнения измерений изотопного состава урана с помощью программ MGAU/MGA++?
8. Каким образом осуществляется защита кристалла детектора от внешнего излучения в гамма-спектрометрической системе для анализа изотопного состава урана с помощью расчетных кодов MGAU/MGA++?
9. Каким образом выполняется оптимизация времени и геометрии измерений?
10. Для чего блок детектирования комплектуется дополнительным коллиматором и селективными фильтрами?
11. Какие линии излучения изотопов урана должны присутствовать в спектре для его анализа с помощью кодов MGAU/MGA++?
12. Какие ограничения по толщине стенки контейнера предъявляются при использовании расчетных кодов MGAU/MGA++?

**Описание задания 2.** Определение изотопного состава образцов урана с помощью гамма-спектрометрической системы на основе HpGe детектора, управляемой программой FRAM.

Управляющий расчетный код FRAM предназначен для работы, как с коаксиальным, так и планарным детекторами. Использование кода в сочетании с коаксиальным детектором позволяет лучше продемонстрировать его отличия и преимущества от кода MGA/MGAU.

Анализ изотопного состава урановых образцов выполняется гамма-спектрометрической системой с HpGe детектором и управляющим кодом FRAM в автоматическом режиме. Однако, в отличие от кода MGAU/MGA++, программа предоставляет оператору большую степень свободы действий, позволяющую вносить изменения в алгоритм обработки результатов измерений: фонового континуума, площади пиков, относительной эффективности, относительной активности. Настройка параметров анализа позволяет адаптировать программу для измерений в присутствии мешающих изотопов.

Для настройки параметров измерений в программе FRAM, от оператора гамма-спектрометрической системы требуются не только хорошие теоретические знания, но также значительный опыт использования кода в практических целях. Поэтому настройка системы должна быть выполнена заранее преподавателем/инструктором. Однако, ее возможности должны быть продемонстрированы обучающимся.

В зависимости от обогащения используемых для измерений лабораторных образцов для анализа могут быть использованы рекомендованные разработчиком (Лос-Аламосской национальной лабораторией) наборы параметров, поставляемые вместе с расчетным кодом. В частности, файлы uloenr.pst и uhienr.pst могут использоваться для измерений изотопного состава урана низкого (менее 10 %) и высокого (более 10 %) обогащения.

Программа настроена на выполнение внутренней калибровки. Это означает, что калибровки по энергии, разрешению пиков и их форме выполняются по данным, содержащимся в измеряемом спектре.

Для определения изотопов, которые не имеют собственных гамма-линий (например,  $^{236}\text{U}$ ), в программе FRAM предусмотрен механизм их учета с помощью настраиваемых формул корреляции.



### ПОРЯДОК ВЫПОЛНЕНИЯ ЗАДАНИЯ

1. Ознакомиться с помощью преподавателя/инструктора с составом и назначением элементов измерительной системы для определения обогащения урана.

2. В соответствии с руководством по эксплуатации подключить измерительную и управляющую системы гамма-спектрометрического тракта к источнику(ам) электрического питания.

3. Ознакомиться с помощью преподавателя/инструктора с рабочим меню программного обеспечения, предназначенного для управления измерительной системой.

4. Поднять напряжение на детекторе до рабочего значения, в соответствии с паспортными характеристиками. Прогреть систему в рабочем режиме в течение рекомендованного промежутка времени.

5. Убедиться в работоспособности системы путем пробного набора фонового спектра за короткий (10–30 с) промежуток времени.

6. Выполнить с помощью преподавателя/инструктора настройку гамма-спектрометрической системы для анализа изотопного состава урана.

7. Подобрать с помощью преподавателя геометрию и время измерения исследуемых образцов урана.

8. В соответствии с принятыми настройками системы и выбранной геометрией выполнить измерение обогащения лабораторных образцов урана. Результаты измерений занести в табл. 4.33. Рекомендуется использовать для анализа образцы, измеренные с помощью программы MGAU/MGA++, чтобы существовала возможность сравнения результатов анализов, выполняемых в первом и втором задании.

Таблица 4.33. Результаты определения обогащения лабораторных образцов урана

Номер образца					
Обогащение					
Погрешность измерения					

9. Для образца с известным обогащением, произвести оценку влияния защитного экрана на результаты анализа. Использовать для защиты пластины из доступного материала – железа, алюминия. Результаты измерений занести в табл. 4.34.

Таблица 4.34. Влияние защитного экрана на результаты анализа

Наимен. образца	Материал защиты	Толщина защитного экрана, мм	Содержание $^{235}\text{U}$		Содержание $^{238}\text{U}$	
			измеренное	паспортное	измеренное	паспортное

10. Обсудить результаты измерений с преподавателем/инструктором.

11. Подготовить отчет о проделанной работе.

### Контрольные вопросы к заданию 2 части 3 NS4.6.3. лабораторной работы №3.

1. Какой диапазон энергий используется в расчетном коде FRAM для определения изотопного состава уранового образца?

2. Какие преимущества предоставляет возможность использования для анализа изотопного состава высокоэнергетической части спектра?

3. Какие сложности возникают при использовании метода изотопных отношений для широкого диапазона энергий излучения урана?

4. Гамма-линии каких дочерних продуктов распада урана используются для анализа его изотопного состава?

5. Что такое внутренняя калибровка и в чем ее преимущества?

6. Какие особенности и недостатки использования программы FRAM для анализа изотопного состава урана?

7. Назовите достоинства программы FRAM для анализа изотопного состава урана.

### **Контрольные вопросы к заданию 1 и 2 части 3 NS4.6.3. лабораторной работы №3.**

1. Какие изотопы урана вы знаете?
2. Какие основные энергетические линии излучения изотопов урана вы знаете?
3. В чем заключается смысл метода изотопных отношений?
4. С помощью какого соотношения можно рассчитать обогащение урана по методу изотопных отношений?

### **Список дополнительной литературы**

1. Каталог приборов учета и контроля ядерных материалов /Третье издание. – Всероссийский научно исследовательский институт автоматики (ВНИИА), Брукхэвенская национальная лаборатория. Департамент энергетики США, 2009.
2. INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, Safeguard Techniques and Equipment, International Nuclear Verification Series No1 (revised). Vienna. 2003 Edition. p. 92.
3. Handbook of Nuclear Safeguard Materials/ed. by Donald R. Rogers. Monsanto Fellow, 1983.
4. Reilly D., Ensslin N., Smith H., Kreiner S. Passive Nondestructive Assay of Nuclear Materials. NUREQ/CR-550, LA-UR-90-732. 1991.
5. Sampson T. Measurement Control: Principles and Practice as Applied to Nondestructive Assay. La-12233-MS VC-700. December, 1991.
6. Nuclear Safeguards Training Program, Los-Alamos, 1997.
7. Труды Российской международной конференции по учету, контролю и физической защите ядерных материалов. – 9–14 марта, 1997, Обнинск, Россия.
8. Труды трехстороннего семинара «Измерения, проверка наличных количеств и оценка баланса ядерных материалов», 9–13 октября, 2000, Обнинск, Россия.
9. R. Gannink, W. D. Ruther et al. MGAU. Новая программа для измерения степени обогащения U-235.– Lawrence Livermor National Laboratory, USA, UCRL-JR-114713.
10. U–Pu InSpector. Методические указания. Руководство по работе с аппаратурой. УМЦУК, Обнинск, 1988 г.
11. Томас Е. Семпсон, Томас А. Келли. Руководство пользователя PC/FRAM. – LANL–РФЯЦ ВНИИЭФ, 1998.
12. Томас А. Келли, Томас Е. Семпсон, Доротея Де Лэнн. PC/FRAM: Алгоритмы для измерения изотопного состава плутония с помощью гама-спектрометрии. Перевод с английского. Лос–Аламос, Нью–Мексико, 87545, США.
13. Кожин А.Ф. Применение спектрометра U–PU Inspector для измерения и концентрации делящегося изотопа или изотопного состава ЯМ/ Лабораторный практикум. – М: МИФИ, 2002.
14. 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).
15. 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.
16. L.A. Kull and R.O. Ginaven, "Guidelines for Gamma–Ray Spectroscopy Measurements of <sup>235</sup>U Enrichment" Brookhaven National Laboratory report BNL–50414 (1974).
17. D.R. Terry, "Development of IAEA Safeguards Measurements for Enrichment Plants," Transaction of the American Nuclear Society 50,176 (1985).
18. .N. Dragnev and B.P. Damyanov, "Methods for Preciese, 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.
19. Методы измерений ядерных материалов: учеб. пособие для вузов / Бушуев А.В. – М. : МИФИ, 2001. – ISBN 5-7262-0386-0.