

УТВЕРЖДАЮ
Декан ФТФ



В.И. Бойко

« 23 » июня 2008 г.

МЕТОДЫ ИЗМЕРЕНИЯ ЯДЕРНЫХ МАТЕРИАЛОВ

ЧАСТЬ I

Методические указания к выполнению лабораторных работ
по курсам «Дозиметрия и защита от ионизирующих излучений ядерного
реактора», «Приборы и методы физических измерений»
для студентов IV–V курсов,
обучающихся по направлению 140300 «Ядерная физика и технологии»,
специальностей 140305 «Ядерные реакторы и энергетические установки»,
140309 «Безопасность и нераспространение ядерных материалов»

Составители **М.Е. Силаев, Ю.Б. Чертков**

Издательство
Томского политехнического университета
2008

УДК 621.039.53/.54(07)

ББК 31.46я7

М54

М54

Методы измерения ядерных материалов: методические указания к выполнению лабораторных работ по курсам «Дозиметрия и защита от ионизирующих излучений ядерного реактора», «Приборы и методы физических измерений» для студентов IV–V курсов, обучающихся по направлению 140300 «Ядерная физика и технологии», специальностей 140305 «Ядерные реакторы и энергетические установки», 140309 «Безопасность и нераспространение ядерных материалов». Часть I / сост. М.Е. Силаев, Ю.Б. Чертков. – Томск: Изд-во Томского политехнического университета, 2008. – 37 с.

ISBN 5-98298-224-5

УДК 621.039.53/.54(07)

ББК 31.46я7

Методические указания рассмотрены и рекомендованы
к изданию методическим семинаром кафедры
физико-энергетических установок ФТФ
«21» января 2008 г.

Зав. кафедрой физико-энергетических установок
доктор физ.-мат. наук,
профессор



В.И. Бойко

Председатель
учебно-методической комиссии



В.Д. Каратаев

Рецензент

Кандидат технических наук,
заведующий лабораторией № 33 ФГНУ НИИ ЯФ при ТПУ
В.А. Варлачев

ISBN 5-98298-224-5

© Силаев М.Б., Чертков Ю.Б., составление, 2008

© Составление. Томский политехнический университет, 2008

© Оформление. Издательство Томского политехнического университета, 2008

ОГЛАВЛЕНИЕ

ВВЕДЕНИЕ	4
Лабораторная работа № 1	
АЛЬФА-СПЕКТРОМЕТРИЧЕСКИЕ ИЗМЕРЕНИЯ	
ОТНОСИТЕЛЬНОГО СОДЕРЖАНИЯ ^{238}Pu В ОБРАЗЦАХ	
ПЛУТОНИЯ	5
Лабораторная работа № 2	
ИЗМЕРЕНИЕ ИЗОТОПНОГО СОСТАВА УРАНА И ПЛУТОНИЯ	
С ПОМОЩЬЮ ГЕРМАНИЕВОГО ГАММА-СПЕКТРОМЕТРА.....	12
Лабораторная работа № 3	
ОПРЕДЕЛЕНИЕ ИЗОТОПНОГО СОСТАВА ОБРАЗЦОВ	
ПЛУТОНИЯ И УРАНА С ПОМОЩЬЮ ПРОГРАММЫ FRAM.....	24
ПРИЛОЖЕНИЕ I.....	32
СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ	36

ВВЕДЕНИЕ

Большое практическое значение имеют приборы разрушающего, неразрушающего и дистанционного контроля одного или нескольких интересующих компонент в составе материала или изделия. Эти приборы представляют собой как сложные измерительные комплексы, так и сравнительно простые устройства, реализующие ядерно-физические методы контроля. Делящиеся нуклиды обладают разнообразными и уникальными ядерными свойствами, среди которых важнейшими для аналитических целей являются процесс деления и естественная радиоактивность. Наибольшее распространение получили следующие методы контроля:

- по собственным α - и γ -излучениям;
- по нейтронам спонтанного деления;
- по нейтронам, испускаемым в реакциях типа (α , n);
- по мгновенным и запаздывающим излучениям при вынужденном делении;
- по поглощению от внешнего источника фотонного излучения.

Лабораторные работы, включенные в данное методическое пособие рассчитаны на изучение методов определения характеристик делящихся материалов по собственному α - и γ -излучениям.

Особое внимание уделено методам определения изотопного состава образцов по результатам измерений γ -спектров с помощью специализированного программного обеспечения. Информация об изотопном составе урана и плутония необходима для следующих целей:

- контроль технологических процессов;
- контроль качества оружейного плутония;
- проверочные измерения при осуществлении учета и контроля;
- расшифровка результатов измерений, полученных методом счета нейтронных совпадений или калориметрии.

Задачи данных методических указаний формировались с учетом следующего:

- достаточно широкая распространенность изучаемой методики в практике учета и контроля делящихся материалов;
- возможность реализации методик в условиях вуза при существующих нормах работы с радиоактивными источниками и установленным временным ограничением.

Все лабораторные работы выполняются только под непосредственным руководством преподавателя или квалифицированного инструктора.

Лабораторная работа № 1

АЛЬФА-СПЕКТРОМЕТРИЧЕСКИЕ ИЗМЕРЕНИЯ ОТНОСИТЕЛЬНОГО СОДЕРЖАНИЯ ^{238}Pu В ОБРАЗЦАХ ПЛУТОНИЯ

Цель работы: изучение метода спектрометрии α -частиц, испускаемых образцами плутония и других актиноидов.

Радиоактивный распад с испусканием α -частиц происходит в двух группах элементов: в нуклидах тяжелее свинца и редкоземельных элементах с числом нейтронов > 84 . Спектр α -частиц, испускаемых при радиоактивных распадах, дискретен. Их энергии лежат в диапазоне 4...7 МэВ. Некоторые ядерно-физические характеристики α -эмиттеров приведены в табл. 1.1.

Таблица 1.1

Краткая информация об альфа-излучении некоторых актиноидов

Нуклид	Период полураспада $T_{1/2}$, лет	Энергия α -частиц E_{α} , кэВ	Выход α -частиц I_{α} , %
^{228}Th	1,91	5340 ± 1	$27,6 \pm 0,9$
		$5423 + 1$	$71,7 \pm 0,9$
^{232}Th	$1,4 \cdot 10^{10}$	3953 ± 2	22 ± 3
		4010 ± 3	77 ± 3
^{233}U	$1,6 \cdot 10^5$	$4824 + 1$	84 ± 3
^{234}U	$2,46 \cdot 10^5$	$4723 + 1$	$28,4 + 0,1$
		$4775 + 1$	$71,4 \pm 0,1$
^{234}U	$7,1 \cdot 10^6$	4368 ± 10	15 ± 3
		$4396 + 3$	55 ± 3
^{238}U	$4,5 \cdot 10^9$	4150 ± 5	$23 + 4$
		4198 ± 5	$77 + 4$
^{238}Pu	87,74	5456 ± 1	$28,8 + 0,1$
		5496 ± 1	$71,6 \pm 0,1$
^{239}Pu	$2,4 \cdot 10^4$	5106 ± 1	$11,4 \pm 0,2$
		5145 ± 1	$15,1 + 0,2$
		5157 ± 1	$72,7 \pm 0,2$
^{240}Pu	$6,5 \cdot 10^3$	5123 ± 1	$27,0 + 0,5$
		5168 ± 2	$73,0 \pm 0,5$
^{241}Am	432,2	$5442,9 \pm 0,1$	$12,8 \pm 0,2$
		$5485,6 \pm 0,1$	$85,2 \pm 0,8$
^{242}Cm	0,44	6069 ± 1	$25,9 \pm 0,5$
		6113 ± 1	$74,1 \pm 0,5$
^{244}Cm	18,1	5763 ± 1	$23,6 + 0,3$
		5805 ± 1	$76,4 \pm 0,2$

Дискретный характер α -излучения позволяет проводить количественный анализ содержания радионуклидов с помощью спектрометрических измерений.

На присутствие α -излучающих радионуклидов могут указывать три признака:

- испускание α -частиц;
- испускание нейтронов, возникающих в результате (α, n)-реакций на легких ядрах (Be, F, O, C, Al), присутствующих в образце;
- разогрев образцов в результате торможения в них α -частиц.

^{238}Pu является практически важным изотопом плутония. Несмотря на его относительно малую концентрацию (табл. 1.2), он вносит значительный вклад как в тепловыделение, так и в нейтронное излучение образцов плутония. Данные о содержании ^{238}Pu в образце необходимы для расшифровки результатов анализов, выполненных методом калориметрии или счета нейтронных совпадений.

Таблица 1.2

Изменение изотопного состава плутония с ростом выгорания

Изотоп	Содержание изотопа в Pu			
	^{238}Pu	0,0024	0,012	0,20
^{239}Pu	97,96	93,82	82,49	67,01
^{240}Pu	2,01	8,90	13,75	21,80
^{241}Pu	0,02	0,24	2,69	8,11
^{242}Pu	0,003	0,02	0,76	2,44

Для неразрушающего определения содержания изотопа ^{238}Pu в плутонии используют γ -спектрометрию (например, программы MGA и FRAM), для разрушающих – масс-спектрометрию или α -спектрометрию. Разрушающие анализы проводятся в случаях:

- проверки результатов неразрушающих измерений;
- проведения особо важных контрольных измерений;
- аттестации стандартных образцов.

Использование неразрушающих анализов помогает контролировать технологические процессы, в которых ядерные материалы (ЯМ) находятся в балк-форме, и необходимости специально применять разрушающую процедуру нет.

Часто масс-спектрометрические измерения изотопного состава образцов плутония дополняются α -спектрометрическими анализами ^{238}Pu . Так поступают в случаях, когда содержание Pu недостаточно для прове-

дения точного масс-спектрометрического анализа, или когда он интерферирует с ^{238}U из-за загрязнения масс-спектрометра или образца ураном.

Поскольку типичное отношение уран/плутоний в выгоревшем топливе составляет примерно 100:1, а концентрация ^{238}Pu не превышает 1 %, для выделения плутония требуется химическое разделение с коэффициентом очистки порядка 10^4 . Следует помнить, что результаты масс-спектрометрических измерений Pu чувствительны к присутствию даже малого количества урана, оставшегося в образце в результате неполного разделения.

Даже при концентрации ^{238}Pu 0,01...0,7 % (массовых) его вклад в активность достаточно заметен по сравнению с остальными изотопами плутония. Например, если образец содержит 0,15 % Pu, 86 % ^{239}Pu и 11,5 % ^{240}Pu , то около 25 % общей α -активности составляет активность ^{238}Pu . Удельная α -активность ^{241}Pu и ^{242}Pu настолько мала, что ею можно пренебречь даже в том случае, когда содержание каждого из них достигает 10 % (по массе).

Хорошо отделяются α -пики ^{238}Pu с энергиями 5,50 МэВ и 5,46 МэВ в спектре от группы пиков ^{239}Pu и ^{240}Pu , находящихся в интервале энергий 5,11...5,17 МэВ. В этой группе α -пики ^{239}Pu и ^{240}Pu , как правило, невозможно разделить.

Плутониевый источник для α -спектрометрических измерений изготавливают следующим образом. Порцию раствора, содержащего плутоний, разбавляют азотной кислотой. Аликвоту разбавленного раствора экстрагируют вместе с эквивалентным объемом ТОФО (триоктилфосфиноксида) в ксилоле. Часть органической фазы выпаривают на счетный диск. В других случаях плутониевую фракцию можно отделить и очистить с помощью ионообменной процедуры, а аликвоту очищенного раствора выпарить на подложку (счетный диск). Присутствие в источнике инертного остатка может привести к поглощению α -частиц и деградации α -спектра.

Для изготовления α -источников с тонким и равномерным слоем радиоактивного вещества применяют и другие способы: испарение в вакууме, катодное или лазерное распыление и т. д. Счетный диск изготавливается из хорошо отполированной металлической или стеклянной пластины. Обычно он имеет диаметр 25 мм, толщину 0,05 мм, в центре – углубление диаметром 4 мм. Завершающие процедуры изготовления источника включают выравнивание слоя органического осадка и выжигание органической компоненты счетного слоя.

^{241}Am необходимо предварительно удалить из образца, потому что его α -излучение может накладываться на излучение ^{238}Pu .

Поскольку измеряется отношение $^{238}\text{Pu}/(^{239}\text{Pu}+^{240}\text{Pu})$, необходимости знать количество плутония в источнике нет. Содержание Pu рассчитывается из отношения его α -активности к полной α -активности источника, а относительное содержание ^{239}Pu и ^{240}Pu определяется с помощью масс-спектрометрии отдельного образца того же раствора плутония.

Изотопное отношение $R_{8/9} = ^{238}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ можно вычислить следующим образом:

$$R_{8/9} = \frac{S_8}{S_9} \left(\frac{a_9}{a_8} + \frac{a_0}{a_8} \cdot R_{0/9} \right), \quad (1.1)$$

где $R_{8/9} = ^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ получают с помощью масс-спектрометрии;

S_8 – измеренное число отсчетов в суммарном пике 5,50 МэВ и 5,46 МэВ;

S_9 – измеренное число отсчетов в области пиков ^{240}Pu и ^{239}Pu с энергией 5,11...5,17 МэВ;

$a_8 = 3800 \cdot 10^7$ расп / (мин · мкг) – удельная α -активность ^{238}Pu ;

$a_9 = 1,376 \cdot 10^5$ расп / (мин · мкг) – удельная α -активность ^{239}Pu ;

$a_0 = 5,058 \cdot 10^5$ расп / (мин · мкг) – удельная α -активность ^{240}Pu .

^{241}Am образуется из ^{241}Pu , распадающегося с периодом 14,4 года. Если после очистки от ^{241}Am прошло более двух дней, требуется учитывать его растущий вклад в пик 5,50...5,46 МэВ.

Случайная погрешность определения ^{238}Pu может составлять около 2 % и меньше при его содержании в плутонии 0,01 %. Отношение $^{238}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ определяют с погрешностью 2...5 %, приемлемой для целей контроля образцов плутония и большинства других применений.

Наиболее часто для спектрометрии α -частиц используют поверхностно-барьерные Si(Au)-детекторы, которые имеют тонкое входное окно (толщиной несколько микрометров) и работают без охлаждения. Площадь чувствительной поверхности Si(Au)-детекторов может достигать 10...15 см². Однако разрешающая способность больших детекторов обычно хуже, чем малых. Это объясняется увеличением их емкости и поверхностных токов утечки. Высокая стабильность полупроводниковых спектрометров позволяет проводить длительные измерения со слабыми источниками. Другое их достоинство – большой (по сравнению с другими спектрометрами) телесный угол, в котором регистрируются вылетающие из источника α -частицы.

В настоящее время серийно производятся пассивные ионно-имплантированные планарные кремниевые (PIPS) детекторы α -излучения. Их активная площадь составляет от 300 мм² до 1200 мм², а энергетическое разрешение – от 17 кэВ до 37 кэВ соответственно. С помощью

кремниевого спектрометра практически невозможно разделить α -частицы, энергии которых отличаются менее чем на 50 кэВ.

Ширина пиков в измеренном α -спектре зависит не только от разрешающей способности спектрометра, но и от некоторых искажающих факторов:

1. Теряют часть энергии α -частицы внутри источника и в покрывающей его пленке. Для α -частиц с энергией 6 МэВ потери составляют около 0,2 кэВ/(мкг/см²). Из-за этих потерь уменьшается энергия вылетающих из источника α -частиц и увеличивается их разброс по энергии, пики уширяются и сдвигаются в сторону низких энергий, у них появляются длинные «хвосты». Чтобы уширение пиков не превосходило 10 кэВ, слой вещества не должен быть более 5...10 мкг/см². Материалом для подложек служит нержавеющая сталь или стекло.

2. Могут терять энергию α -частицы в результате взаимодействий с молекулами воздуха в пространстве между источником и детектором. Поэтому источник и детектор помещают в вакуумную камеру. Чтобы уширение и смещение пиков не превосходило 10 кэВ, давление в камере не должно превышать 10 мм рт.ст. В лучших современных спектрометрах разрежение достигает 10⁻⁴ мм рт. ст., а для предотвращения загрязнения детектора, вызываемого вылетающими из источника ядрами отдачи, применяют обратное напряжение, подаваемое на корпус детектора.

3. Могут терять энергию α -частицы во входном окне («мертвом» слое) детектора. Из-за разных углов падения α -частиц, их длины пробегов во входном окне различны, что обуславливает неодинаковые потери энергии. Это ведет к уширению пиков и росту их «хвостов». Чтобы уравнивать пробеги, образец от детектора либо удаляют, либо используют диафрагму с коллимирующим отверстием. Применяемые винтовые устройства позволяют изменять расстояние детектор-источник без нарушения вакуума в камере.

Искажение формы линий усложняет математическую обработку α -спектров. В таких случаях нужно использовать специальные вычислительные программы, в которых пики аппроксимируются асимметричными гауссианами.

Лабораторная работа основана на использовании α -спектрометра. Для проведения экспериментов используется набор образцовых стандартных альфа-источников (ОСАИ).

Порядок выполнения работы

1. Калибровка измерительной системы.

1.1. Определение оптимального напряжения на детекторе, обеспечивающего наилучшее разрешение.

В камеру помещается источник ОСАИ ^{239}Pu . Камера вакуумируется. Снимаются зависимости положения максимума пика, скорости счета в пике, полуширины пика от подаваемого напряжения. Диапазон изменения напряжений от 10 В до 100 В. Время каждого измерения – 3...5 мин.

1.2. Определение времени формирования импульса, обеспечивающего наилучшее разрешение спектрометра.

При выбранном оптимальном напряжении снимается зависимость тех же параметров от постоянной времени формирования импульса. Диапазон изменения постоянной времени формирования импульса – 0,5...12 мкс. Время каждого измерения – 3 мин.

1.3. Получение зависимости положения максимума пика на шкале спектрометра от энергии α -частицы с помощью набора стандартных α -источников.

В камеру помещается источник, состоящий из смеси ^{233}U , ^{238}Pu , ^{239}Pu . Измеряется спектр α -излучения. Используя данные табл. 1.1, строится график зависимости номера канала, в котором находится максимум пика, от энергии α -частицы.

2. Изучение факторов, искажающих спектр α -излучения.

2.1. Исследование влияния расстояния источник-детектор на форму и положение пика.

В камеру помещается источник ОСАИ ^{238}Pu . Снимаются зависимости положения максимума пика и полуширины пика от расстояния источник-детектор.

2.2. Исследование влияния коллиматора на форму пика.

Применение коллиматора обеспечивает попадание всех α -частиц на поверхность детектора под одним (прямым) углом. Между детектором и источником помещается коллиматор – пластина из оргстекла с тонкими отверстиями. Исследуется изменение формы пика.

2.3. Изучение влияния уровня давления в камере на форму и положение пика.

Проводится набор спектра при атмосферном давлении в камере. Исследуется изменение формы пика по сравнению с опытом, когда давление снижено до 0,1 ат.

2.4. Определение влияния защитной пленки на поверхности α -источника на параметры измеренного α -спектра.

Проводятся измерения α -спектров источников, закрытых защитной пленкой разной толщины. Сравнение полуширины и формы пиков в полученных спектрах.

3. Идентификация радионуклида по спектру его α -излучения.

В камеру помещается источник ОСАИ. Снимается спектр α -излучения. Используя данные библиотеки нуклидов и результаты калибровки, идентифицируют α -излучающий нуклид (нуклиды).

4. Определение изотопного отношения $^{238}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ в образце.

4.1. Размещение в камере образца плутония с неизвестным изотопным составом и измерение спектра его α -излучения.

4.2. Идентификация в измеренном спектре α -пиков ^{238}Pu и ^{239}Pu .
Определение площади α -пиков ^{238}Pu и ^{239}Pu .

4.3. Определите изотопного соотношения $^{238}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ в образце с помощью соотношения (1.1).

Отчет о работе

По результатам, полученным при решении каждой задачи, составляется краткий отчет, включающий:

1. Параметры установки, обеспечивающие наилучшее разрешение спектрометра ($U_{\text{раб}}$, $\tau_{\text{ф}}$).
2. Калибровочный график зависимости $N_{\text{кан}}(E_{\alpha})$.
3. Выводы о степени влияния на форму и положение пика различных искажающих факторов.
4. Результаты идентификации α -излучающего нуклида.
5. Заключение.

Вопросы к работе № 1

1. От каких факторов зависит разрешающая способность Si(Au) α -спектрометра?
2. Что будет происходить с регистрируемым α -спектром при увеличении толщины образца?
3. Можно ли измерить α -спектр от образца, содержащего кроме α -излучателей продукты деления?
4. Можно ли определить относительную концентрацию ^{239}Pu и ^{240}Pu в плутониевом образце с помощью α -спектрометрии?
5. Каково происхождение γ - и рентгеновского излучений, сопровождающих α -распады радионуклидов?

Лабораторная работа № 2

ИЗМЕРЕНИЕ ИЗОТОПНОГО СОСТАВА УРАНА И ПЛУТОНИЯ С ПОМОЩЬЮ ГЕРМАНИЕВОГО ГАММА-СПЕКТРОМЕТРА

Цель работы: определение изотопного состава урана и плутония в исследуемых материалах по специально разработанной методике с применением германиевого γ -спектрометра высокого энергетического разрешения.

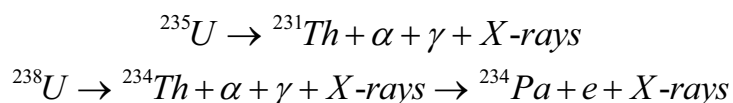
В работе студенты изучают метод определения изотопного состава урана и плутония на спектрометре **InSpector** с высоким энергетическим разрешением. Методика измерения основана на регистрации γ - и рентгеновского излучения в диапазоне 84...300 кэВ, где имеются фотопики от излучения изотопов урана и плутония.

Метод определения изотопного состава урана и плутония без применения эталонов, используемый в программе **U-Pu InSpector**, основан на измерении относительной интенсивности излучений отдельных изотопов в диапазоне энергий 84...130 кэВ. Высокое энергетическое разрешение прибора InSpector обеспечивает возможность программам MGA и MGAU правильно разложить перекрывающиеся фотопики и скорректировать отличие в эффективности регистрации гамма-квантов различных энергий.

Предлагаемая методика позволяет определить изотопный состав образцов урана и плутония в широком диапазоне концентраций различных изотопов без применения эталонных образцов.

Основы методики определения изотопного состава урана

В спектре излучения уранового образца имеется большое количество фотопиков γ - и рентгеновского излучения урана. Это излучение возникает в процессе распада ^{235}U , ^{238}U и их дочерних продуктов по следующим цепочкам:



Метод измерения обогащения без применения эталонов, используемый в программе **U-Pu InSpector**, основан на измерении относительной интенсивности излучений ^{235}U и ^{238}U в диапазоне энергий 84...130 кэВ. Количество изотопа ^{234}U определяется по γ -линии 121 кэВ.

Измеренное отношение площадей соответствующих фотопиков позволяет рассчитать соотношение между концентрациями изотопов по формуле

$$\frac{N^i}{N^k} = \frac{S^i}{S^k} \frac{T_{1/2}^i}{T_{1/2}^k} \frac{I_\gamma^k}{I_\gamma^i} \frac{\varepsilon_\gamma^k}{\varepsilon_\gamma^i}, \quad (2.1)$$

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_γ^i – квантовый выход излучения, регистрируемого в фотопике S^i ;

ε_γ^i – эффективность регистрации излучения в фотопике S^i .

Величины I_γ^i известны для каждой группы квантов излучения уранового образца. Также известны и отношения интенсивностей рентгеновского излучения этих изотопов в отсутствие поглощения, поэтому отношение измеренных в реальной геометрии интенсивностей, т. е. площадей фотопиков, дает возможность аккуратно скорректировать ослабление излучения в образцах и различие в эффективностях регистрации гамма-квантов 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 перекрывающих друг друга фотопиков. Разложение мультиплетов на отдельные фотопики выполняется программой MGAU с помощью математической модели, использующей для подгонки реальный изолированный фотопик из измеряемого спектра.

Следует заметить, что разложение фотопиков возможно лишь в спектрах, полученных с помощью детекторов с очень высокими характеристиками энергетического разрешения. Измерения должны проводиться на спектрометрах с разрешением не хуже 700 эВ, для гамма-линии – 122 кэВ ^{57}Co . Спектры урана в различных диапазонах энергий приведены в Приложении I.

Зная соотношение между изотопами ^{234}U , ^{235}U и ^{238}U , можно рассчитать обогащение уранового образца по формуле

$$E = \frac{^{235}\text{U}}{(^{235}\text{U} + ^{234}\text{U} + ^{238}\text{U})}. \quad (2.2)$$

Погрешность определения обогащения данным методом составляет не более нескольких процентов для образцов урана от обедненного до высокообогащенного, причем вблизи границ указанного интервала обогащений погрешности возрастают. С наименьшей погрешностью определяются образцы с обогащением около 10 %, так как амплитуды фотопиков ^{235}U и ^{238}U примерно одинаковы.

При измерениях обогащения по данной методике следует учитывать, что относительное содержание ^{238}U определяется по γ -линиям 92,37 кэВ и 92,79 кэВ, принадлежащих ^{234}Th – дочернему продукту α -распада ^{238}U .

Для правильного определения обогащения, ^{234}Th должен находиться в равновесии с материнским ^{238}U , что достигается примерно через 5 месяцев после химической очистки урана.

Следует иметь в виду, что наилучшие результаты получаются при измерениях с открытыми образцами, поскольку излучение 84...130 кэВ сильно поглощается в стенках контейнера, значительно ухудшая точность проводимого анализа.

К недостаткам данной методики следует отнести то, что ^{236}U не испускает γ -квантов, и это не позволяет определить его содержание в урановых образцах. В то время как его содержание в регенерированном уране может достигать нескольких процентов.

Основы методики определения изотопного состава плутония

В плутониевых образцах, выделенных из отработавшего топлива ядерных реакторов, содержатся изотопы ^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{241}Pu , ^{242}Pu , а также ^{237}U и ^{241}Am – продукты α - и β -распада ^{241}Pu .

В программе **U-Pu InSpector** изотопный состав определяется по гамма-излучению в диапазоне 90...300 кэВ, где имеются гамма-линии практически всех изотопов плутония (кроме ^{242}Pu). Данные об излучении изотопов Pu, используемые в программе MGA, приведены в табл. 2.1.

Из спектра излучения плутониевого образца, набранного на германиевом спектрометре InSpector, можно, как и в случае с урановым образцом, определить относительные эффективности регистрации отдельных γ -линий и относительное содержание перечисленных выше изотопов без применения эталона. Результат не зависит от физического и химического состава образца, его геометрии и времени изготовления. Единственным условием является однородность изотопного состава плутония во всем объеме образца.

Таблица 2.1

Данные об излучении изотопов Pu, используемые в программе MGA

^{238}Pu		^{239}Pu		^{240}Pu		^{241}Pu		^{241}Am	
E_γ , кэВ	$\gamma/\text{с}\cdot\text{г}$	E_γ , кэВ	$\gamma/\text{с}\cdot\text{г}$	E_γ , кэВ	$\gamma/\text{с}\cdot\text{г}$	E_γ , кэВ	$\gamma/\text{с}\cdot\text{г}$	E_γ , кэВ	$\gamma/\text{с}\cdot\text{г}$
99,9	$4,6\cdot 10^7$	98,8	$2,8\cdot 10^4$	104,2	$5,9\cdot 10^5$	103,7	$3,9\cdot 10^6$	98,9	$2,6\cdot 10^7$
		129,3	$1,4\cdot 10^5$	160,3	$3,4\cdot 10^4$	148,6	$7,2\cdot 10^6$	103,0	$2,5\cdot 10^7$
						208,0	$2,0\cdot 10^7$	125,3	$5,2\cdot 10^6$

Программа MGA применима для анализа разных композиций: от почти чистого ^{239}Pu до образцов, содержащих много тяжелых изотопов плутония.

Изотоп ^{242}Pu не может быть измерен из-за низкой активности (большой период полураспада), поэтому для его оценки программа

MGA использует метод изотопных корреляций, в котором содержание в образце ^{242}Pu рассчитывается через другие изотопы плутония по эмпирической формуле. Минимальная ошибка составляет 10 %.

Как и при измерениях урана, наилучшие результаты получаются при измерениях образцов небольшой толщины, упакованных в контейнеры с тонкими слабопоглощающими стенками. Если образец находится в контейнере с толстыми стенками, провести измерения в данном диапазоне энергий невозможно.

Установка Ge-детектора

Подключить с помощью соединительных кабелей Ge-детектор к прибору InSpector. На крышке детектора поместить кадмиевый диск толщиной 1 мм для ослабления рентгеновского излучения и рассеянного гамма-излучения от урана и плутония. Расположить детектор вертикально, чтобы измеряемые образцы можно было помещать непосредственно на коллиматоре.

Программное обеспечение

Работа с инспектором-анализатором начинается с запуска программы Genie-2000 после загрузки операционной системы WINDOWS XP. Программа Genie-2000 выводит на экран главное меню, в котором имеются две основные рабочие программы по измерениям обогащения урана (IMCA) и изотопного состава урановых и плутониевых образцов (U-Pu InSpector).

Программа U-Pu InSpector выполняет следующие виды анализа:

- а) анализ плутония. Для большинства плутониевых образцов определяется относительное содержание изотопов плутония от ^{238}Pu до ^{242}Pu , а также других актинидов: ^{241}Am , ^{237}Np и урана, если он есть;
- б) анализ урана. Программа анализирует образцы урана без примесей плутония. Если анализируется урановая руда, то ^{226}Ra и дочерние продукты отсекаются программой автоматически;
- в) анализ урана или плутония. Данная процедура используется в том случае, когда неизвестно является ли образец чистым ураном или плутонием. После набора спектра программа пытается выполнить обе процедуры анализа: сначала MGAU, затем MGA.

Результаты помещаются в файл отчета, который выводится на экран после окончания анализа.

Измерение изотопного состава урановых и плутониевых образцов

Перед началом работы следует убедиться в том, что установка собрана правильно, инспектор-анализатор включен в сеть (горят зеленые

индикаторы с левой стороны прибора), горит зеленый индикатор на предусилителе германиевого детектора, компьютер включен и загружена операционная система WINDOWS XP.

Запустить программу Genie-2000. На экране появится панель с перечнем программ. После запуска программы Genie-2000 необходимо выбрать файл детектора DET01 из списка файлов в программе **Редактор входов** МКА. В этом файле детектора содержится информация, необходимая для работы программы U-Pu InSpector с германиевым детектором.

Прежде чем начать измерения изотопного состава образцов, необходимо выполнить **калибровку** спектрометра по энергии с помощью стандартных образцовых гамма-источников или с помощью образца высокообогащенного урана.

Калибровка германиевого спектрометра по энергии

Запустить программу Genie-2000. На экране появится панель с перечнем программ.

Прежде чем начинать измерения обогащения урановых образцов, необходимо выполнить калибровку спектрометра по энергии с помощью стандартных образцовых γ -источников или образца обогащенного урана. **При выборе коэффициента усиления спектрометра следует иметь в виду, что для нормальной работы программы ИМСА (Inspector Multi-Channel Analyzer) необходимо, чтобы фотопик ^{235}U с энергией $E_\gamma=185,72$ кэВ размещался примерно в 1975-м канале спектра по середине области, выделенной красным цветом.**

Сначала необходимо выбрать коэффициент усиления спектрометра таким образом, чтобы фотопик с энергией 59,54 кэВ от источника ^{241}Am из набора ОСГИ оказался в области 600...700 каналов спектра. Более точную подгонку коэффициента усиления целесообразно выполнять, набирая спектр непосредственно от уранового образца.

Калибровка выполняется с помощью программы **Набор и анализ гамма-спектров** следующим образом:

1. Выбрать программу **Набор и анализ гамма-спектров** в основном меню программы Genie-2000 и запустить ее.

2. Выбрать режим работы с детектором. Войти в меню режима **Файл, Открыть** и выбрать режим **Детектор**. Затем отметить в окошке файл детектора и нажать **Открыть** и **Готово**. Режим **Файл** позволяет работать с файлами спектров, набранных ранее и сохраненных на диске.

3. Подать высокое напряжение на детектор до начала набора спектра. Для этого нужно войти в меню МКА и выбрать режим **Настройка**. В нижней части экрана появится окно настройки, в котором, в частности, можно включать и выключать высокое напряжение на детектор

(Высокое), а также изменять коэффициент усиления и постоянную времени формирования усилителя (**Усилитель**). Чтобы включить высокое напряжение, нужно войти в режим управления высоким напряжением, и, не изменяя полярности и величины напряжения, нажать кнопку **On** под надписью **Status**. С левой стороны меню настройки появится надпись **Ждите**. Это означает, что нужно подождать около 30 с пока высокое напряжение не достигнет заданного значения. После того, как надпись **Ждите** исчезнет, можно нажать кнопку **Выход** и выйти из меню **Настройка**. Выключение высокого напряжения по окончании работы осуществляется нажатием кнопки **Off**.

4. Определить время измерения. В меню МКА выбрать режим **Установка**, и установить время набора спектра в секундах, минутах или часах по живому или реальному времени, после чего нажать **Принять**.

5. Начать **запуск измерения** нажатием кнопки **Пуск**. При нажатии на клавишу **Стоп** набор спектра прекращается. Обычно остановка набора спектра происходит автоматически по истечении заданного времени измерения. Сброс ранее набранного спектра осуществляется нажатием кнопки **Очистить**, причем эту операцию можно выполнить в любой момент, не останавливая измерения.

6. Осуществить детальный просмотр отдельных участков спектра нажатием кнопки **Растянуть**. При этом экран МКА делится пополам и в верхней его части появляется растянутый участок спектра вблизи того места, где был расположен курсор, а на основном спектре появляется прямоугольник, изменяя границы которого с помощью мыши можно выбирать размер растянутого участка. Этот режим используется в процессе калибровки для более точной установки курсора на вершину фотопика. Выход из этого режима осуществляется нажатием кнопки **Сжать**.

7. Набрать спектр γ -излучения от образца из обогащенного урана, чтобы выполнить калибровку спектрометра по энергии, для этого установить маркер на вершину фотопика с энергией 186 кэВ. Убедитесь, что он находится примерно в 1975 канале спектра. Если фотопик с указанной энергией находится далеко от необходимого положения, следует изменить коэффициент усиления спектрометра и повторить набор спектра. Данную процедуру следует повторять до тех пор, пока фотопик 186 кэВ не окажется в диапазоне 1975 ± 5 каналов.

8. Набрать спектр от обогащенного урана в течение не менее 300 с. В режиме **Калибровка** выбрать калибровку **Только по энергии**. Установить маркер на вершину фотопика 186 кэВ, нажать кнопку **Курсор** и ввести соответствующую данному фотопику точное значение энергии гамма-квантов 185,72 кэВ. Затем повторить ту же операцию с фотопиками с энергиями 143,78 кэВ, 163,36 кэВ и 205,31 кэВ. Градуировочный

график выводится на экран нажатием кнопки **Показать**. По окончании калибровки нажать кнопку **Принять**.

9. Выключить высокое напряжение и выйти в основное меню программы Genie-2000.

Примечание. Калибровку по энергии можно также выполнить с помощью образцовых гамма-источников ^{241}Am , ^{57}Co , ^{152}Eu .

Калибровка германиевого спектрометра с помощью образца-эталоны известного обогащения

Программа PMCG определяет обогащение E , используя следующее уравнение:

$$E = K \cdot R \cdot \exp(-mT),$$

где K – константа калибровки;

R – скорость счета в пике 186 КэВ ^{235}U ;

m – линейный коэффициент ослабления γ -излучения в материале контейнера;

T – толщина стенки контейнера.

Константа K определяется путем измерения скорости счета от образца-эталоны с известным обогащением, а также с известной толщиной и составом стенки контейнера.

В процессе калибровки автоматически определяются:

- поправка на весовой и атомный процент;
- поправка на ослабление γ -излучения с энергией 186 кэВ в материале матрицы;
- поправка на ослабление излучения в стенке контейнера;
- поправка на ослабление излучения в дополнительной металлической пластинке, имитирующей стенку контейнера.

Константы калибровки c поправками и без поправок распечатываются в конце калибровки. Для измерений обогащения неизвестных образцов применяется поправленная константа калибровки. В процессе калибровки оператор может решить, будут ли вновь полученные константы калибровки внесены в системный банк данных или они будут использованы только в текущей серии измерений. Инспектор-анализатор может быть откалиброван как с помощью образцов-эталонны, так и предварительно набранных и сохраненных в памяти компьютера спектров. Константы калибровки сохраняются в специальной базе данных, давая пользователю возможность загрузить старые константы, выбирая их из меню.

По окончанию процесса калибровки программа изображает на экране монитора отчет, который следует распечатать на принтере.

Выполнение калибровки инспектора-анализатора

Из меню Genie-2000 запустить программу ИМСА, дважды нажав левую кнопку мыши. На экране появится первый экран входа в программу **Регистрация в системе.**

В первом окошке **Имя пользователя** набрать **user. Пароль**, пропустить и щелкнуть левой кнопкой мыши на кнопке **Принять**. Если все было сделано правильно, то появится второе окно ИМСА – входная информация пользователя. В окнах этого экрана можно разместить любую информацию пользователя, например, фамилию, учебную группу и пр. По окончании ввода нажать кнопку **Принять**. В следующем окне необходимо выбрать режим работы программы с Ge-детектором. т.е. выбрать строку **В. Приложения GE** и нажать **Принять**.

В следующем окне программа показывает номер детектора, который не следует менять, поэтому нужно просто нажать кнопку **Принять**.

В следующем окне следует сделать выбор режима работы. Если Вы только начали работать с программой, то Вам следует выбрать режим **В. Калибровать систему** и нажать кнопку **Принять**. Если калибровка системы уже проведена, и необходимо переходить к измерениям образцов неизвестного обогащения, то следует выбрать первую строку **А. Измерять образцы**.

На следующих двух экранах следует выбрать ИМСН и метод анализа: **Считать образцы**.

На экране **Параметры электроники** следует проверить параметры измерительной установки: амплитудно-цифрового преобразователя, усилителя, величины и полярности высокого напряжения на детекторе.

Мгновенное включение высокого напряжения величиной 3000 В может привести к выходу из строя измерительной установки, поэтому высокое напряжение подается на детектор плавно со скоростью примерно 100 В в секунду. При этом на экране появляется заставка **Включение высокого напряжения**, а на электронном блоке инспектора загорается индикатор высокого напряжения.

ВНИМАНИЕ! Оператору, работающему на германиевом спектрометре, всегда следует помнить, что любые переключения на работающей установке при включенном высоком напряжении на детекторе могут привести к выходу ее из строя.

После того, как высокое напряжение достигнет номинального значения, на экране появится таблица, в которую следует внести параметры образца-стандарта: материал образца, материал контейнера, толщина стенки контейнера, толщина дополнительного фильтра-поглотителя, обогащение образца, время измерения, идентификатор образца. После

ввода всех параметров следует нажать кнопку **Добавить**. Если в таблице образцов-стандартов присутствуют посторонние образцы, их следует убрать кнопкой **Удалить**. Для калибровки можно использовать несколько эталонов. Параметры каждого из них также следует внести в таблицу. После окончания ввода данных нажать кнопку **Принять**.

Устанавливая на детектор последовательно каждый эталон, выполнить калибровку измерительной системы. После измерения позднего эталона в итоговой таблице появится результат калибровки, который следует распечатать.

При выборе коэффициента усиления спектрометра следует иметь в виду, что для нормальной работы программы U-Pu InSpector необходимо, чтобы фотопик ^{235}U с энергией $E_\gamma = 185,72$ кэВ размещался в 2475-м канале спектра.

Измерение образцов

По окончании калибровки можно переходить к запуску программы U-Pu InSpector. Программа U-Pu InSpector запускается из основного окна программы Genie-2000 двойным щелчком по соответствующей пиктограмме. В первом появившемся окне следует ввести имя пользователя **manager** и, не вводя пароля, нажать **Принять**. Если все было сделано правильно, вы попадаете в главное меню программы U-Pu InSpector.

Измерение образцов

- A. Анализ данных из МКА
- B. Управление детектором
- C. Калибровка
- D. Контроль качества
- E. Управление системой
- F. Управление пользователями
- G. Тестовое измерение
- H. Управление электроникой

Включение высокого напряжения

Если к этому моменту на детектор не подано высокое напряжение, то следует выбрать режим **Управление электроникой**. В окне **Управление высоким напряжением** выбрать режим **On** и щелкнуть **Принять**. При этом начнется подъем высокого напряжения, а на передней панели прибора InSpector справа загорится красный светодиод **HV**. Примерно через 30 с напряжение достигнет заданного значения. При помощи кнопки **Отмена** можно вернуться в главное меню программы.

Выбор оптимальной геометрии измерения

Программа U-Pu InSpector не предъявляет жестких требований к геометрии и расположению образца на детекторе. Тем не менее, перед началом измерений следует оптимизировать геометрию с помощью тестового измерения: выбрать расстояние между образцом и детектором, установить в случае необходимости коллиматор и дополнительный поглотитель.

Для запуска тестового измерения в главном меню следует выбрать режим **Н. Тестовое измерение**. Анализатор начнет набор спектра, а на экране появится окно контрольного измерения, в котором отображаются прошедшее реальное и живое время и процент мертвого времени. В процессе набора эти данные можно обновлять нажатием кнопки **Обновить**. Для перезапуска контрольного измерения с новой геометрией следует нажать кнопку **Очистить**. Чтобы прекратить контрольное измерение и вернуться в главное меню, следует нажать кнопку **Отмена**.

Изменяя расстояние между детектором и образцом, устанавливая коллиматор или дополнительные поглотители из кадмия или меди, следует добиться того, чтобы мертвое время не превышало 30 %. Такая загрузка не оказывает влияния на энергетическое разрешение измерительной системы. Применение коллиматора также полезно в том случае, когда вы хотите получить информацию с определенного участка образца.

Образец плутония с большим временем выдержки после изготовления обычно имеет сильное излучение с энергией 59,6 кэВ из-за накопившегося в нем ^{241}Am , которое следует уменьшить с помощью дополнительных поглотителей. С другой стороны, этот пик нельзя удалять полностью, так как он используется при анализе. Толщину поглотителя следует выбрать такой, чтобы амплитуда пика 59,6 кэВ была сравнима с амплитудой пиков в области 90...100 кэВ.

В качестве дополнительных поглотителей нельзя применять свинец, так как возбуждаемые в нем рентгеновские линии будут мешать проведению анализа.

Начало измерений

После выбора оптимальной геометрии измерений в меню следует выбрать режим **Измерение образца** и алгоритм анализа: **Анализ Pu**, **Анализ U** или **Pu** или **Анализ U**. После выбора алгоритма анализа на экране появится окно **Установка параметров измерения образцов**, в котором можно установить время измерения или полное число набранных импульсов в спектре, режим стирания спектра после измерения (**Очищать спектр**) или продолжения набора (**Прогоны с накоплением**), число прогонов с одним образцом (**Число прогонов**). Например, если ввести время измерения 1000 с, число прогонов равно трем и режим **Прогоны**

с накоплением, то система будет проводить измерение в течение 3000 с и при этом выполнять анализ через 1000 с, 2000 с и 3000 с. На экран будет выведен только последний отчет.

После введения необходимой информации, нажать кнопку **Принять**. Начало процесса измерения будет отмечено свечением красного светодиода на передней панели прибора Inspector.

Во время набора спектра система выводит на экран окно параметров измеряемого образца, в которое следует внести необходимые для анализа дополнительные данные. Если в окне **Дата декларации** поставить дату, отличную от текущей, то в отчете будет присутствовать изотопный состав плутония с поправкой на распад на указанную дату. Будущую дату вводить не следует. Если в окошке **Декларированное содержание ^{242}Pu , %** поставить известное Вам значение содержания данного изотопа в образце, то оно будет принято программой без расчета. Если оставить значение, равное нулю, то программа рассчитает концентрацию данного изотопа по заложенному в ней алгоритму.

После окончания времени набора спектр автоматически сохраняется и обрабатывается. Результаты анализа выводятся на экран и записываются в файл отчета, который следует распечатать на принтере.

Практические задания

Задание 1. Набрать спектр образца высокообогащенного урана и выполнить калибровку спектрометра по энергии.

Задание 2. Определить изотопный состав трех образцов урана различного обогащения. Оценить точность определения содержания ^{235}U в этих образцах.

Задание 3. Сопоставить результаты измерений с контрольными диаграммами. Оценить работоспособность прибора и принять решение о возможности проведения измерений. Занести результаты измерений в базу данных контрольных диаграмм.

Задание 4. Определить изотопный состав тонкой металлической урановой фольги.

Задание 5. Определить изотопный состав плутониевого образца без применения дополнительных поглотителей.

Содержание отчета о лабораторной работе

Отчет о лабораторной работе должен содержать:

- краткое описание принципов определения изотопного состава программами MGA и MGAU;
- распечатки отчетов об измерениях урановых и плутониевых образцов;

- сравнение результатов измерения обогащения урана с предыдущими работами;
- заключение о точности и области применения данного метода для измерения изотопного состава урановых и плутониевых образцов.

Вопросы к работе № 2

1. На чем основан метод определения обогащения U и Pu без применения эталонов?
2. Какой период времени необходимо выдержать образец после химической обработки урана и почему для определения его обогащения методом без применения эталонов?
3. Почему существует ограничение в использовании метода без применения эталонов для образцов, заключенных в контейнеры?
4. Почему изотоп ^{242}Pu не может быть измерен γ -спектрометрическим методом?
5. В чем заключается метод изотопных корреляций и от чего зависит его погрешность?

Лабораторная работа № 3

ОПРЕДЕЛЕНИЕ ИЗОТОПНОГО СОСТАВА ОБРАЗЦОВ ПЛУТОНИЯ И УРАНА С ПОМОЩЬЮ ПРОГРАММЫ FRAM

Цель работы: изучение интерфейса пользователя программы процедуры обработки спектра, используемой в программе FRAM, измерение спектров γ -излучения образцов урана и плутония и определение их изотопного состава.

Введение

Обычно образцы плутония содержат изотопы ^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{241}Pu и ^{242}Pu , большинство из которых испускает γ -излучение в разных диапазонах энергии. Измерениям в каждом диапазоне присущи определенные особенности. Выбор диапазона производится с учетом свойств образца. Данные о распадах перечисленных изотопов представлены в табл. 3.1.

Таблица 3.1

*Сведения о гамма-излучении изотопов плутония
в разных энергетических диапазонах*

Диапазон, кэВ		40...60	90...105	120...450			450...800
^{238}Pu , $T_{1/2} = 87,74$ лет	E_γ , кэВ	43,5	99,9	152,7			766,4
	I_γ , %	$3,5 \cdot 10^{-2}$	$7,4 \cdot 10^{-3}$	$9,4 \cdot 10^{-4}$			$2,2 \cdot 10^{-5}$
^{239}Pu , $T_{1/2} = 24120$ лет	E_γ , кэВ	51,6	98,8	129,3	375,0	413,7	646,0
	I_γ , %	$2,7 \cdot 10^{-2}$	$1,2 \cdot 10^{-3}$	$6,3 \cdot 10^{-3}$	$1,6 \cdot 10^{-3}$	$1,5 \cdot 10^{-3}$	$1,5 \cdot 10^{-5}$
^{240}Pu , $T_{1/2} = 6564$ лет	E_γ , кэВ	45,2	104,2	160,3			642,5
	I_γ , %	$4,5 \cdot 10^{-2}$	$7,1 \cdot 10^{-3}$	$4,0 \cdot 10^{-4}$			$1,4 \cdot 10^{-5}$
^{241}Pu , $T_{1/2} = 14,35$ лет	E_γ , кэВ	–	103,7	148,6	208,0	267,5	–
	I_γ , %	–	$1,0 \cdot 10^{-4}$	$1,9 \cdot 10^{-4}$	$7,9 \cdot 10^{-4}$	$1,8 \cdot 10^{-5}$	–
^{242}Pu , $T_{1/2} = 376300$ лет	E_γ , кэВ	44,9	103,5	158,8			–
	I_γ , %	$3,7 \cdot 10^{-2}$	$3,7 \cdot 10^{-2}$	$3,0 \cdot 10^{-4}$			–

При гамма-измерениях определяются изотопные отношения:

$$f_{238}/f_{239}, f_{240}/f_{239}, f_{241}/f_{239}, f_{242}/f_{239}, \text{ причём сумма } f_{238}+f_{239}+f_{240}+f_{241}+f_{242} = 1.$$

^{242}Pu не может быть измерен напрямую из-за своей низкой активности (большого периода полураспада). Поэтому для его оценки используются методом изотопных корреляций. Эти корреляции зависят от типа реактора и истории облучения материала.

В программе FRAM используется корреляция, относительно независимая от типа реактора:

$$f_{242} = \frac{K \cdot f_{240} \cdot f_{241}}{(f_{239})^2},$$

где $K = 110$.

Серьезный недостаток этой формулы – зависимость f_{242} от ^{241}Pu , который имеет относительно малый период полураспада.

После определения доли ^{242}Pu в плутонии, содержание остальных изотопов должно быть скорректировано:

$$f_i^c = f_i \cdot (1 - f_{242}),$$

где: f_i^c – скорректированное значение содержания i -изотопа плутония; f_i – значение содержания i -изотопа плутония, полученное из измерений.

Если измерить относительную интенсивность γ -излучений отдельных изотопов и определить с помощью самокалибровки относительную эффективность их регистрации, можно установить относительное содержание этих изотопов в образце без помощи калибровочного эталона. Такой подход обеспечивает независимость результата анализа от характеристик образца (размера, формы, физического и химического состава, упаковки, фильтрации) и искажений в измерительном тракте (наложение импульсов, просчеты). Искажения в тракте одинаково влияют на результаты измерения отдельных линий и не сказываются на результате определения их относительной интенсивности.

Во всех диапазонах полезная информация содержится в близких по энергии пиках разных изотопов. При измерениях в верхних диапазонах энергии (450...800 кэВ) можно измерить изотопный состав плутония, находящегося внутри толстостенных контейнеров, без извлечения образца наружу. В результате повышается безопасность работы операторов и появляется возможность инспекций опломбированных контейнеров, используемых для длительного хранения ЯМ. В случае «голового» образца наилучшие результаты дают измерения в нижних диапазонах энергии.

Измерения образцов в тонкостенных контейнерах проводят с помощью планарных Ge-детекторов. Коаксиальные детекторы используют как в случае тонкостенных, так и толстостенных контейнеров.

Некоторые особенности проведения γ -измерений плутония

^{241}Am , накапливающийся в плутониевых образцах со временем, испускает интенсивное гамма-излучение с энергией 59,54 кэВ. Импульсы от квантов 59,54 кэВ могут суммироваться с импульсами от излучений 94,66 кэВ ($U \text{ XK}_{\alpha 2}$), 98,44 кэВ ($U \text{ XK}_{\alpha 1}$), 101,07 кэВ ($\text{Np} \text{ XK}_{\alpha 1}$) и, таким образом, созда-

вать помехи при наблюдении пиков 153 кэВ ^{238}Pu и 160,3 кэВ ^{240}Pu . Для подавления излучения 59,54 кэВ применяют фильтры из Cd, Sn и других материалов (достаточно 2 мм Cd), которые помещают между образцом и детектором.

Результат анализа зависит от свойств детектора: его энергетического разрешения и формы пиков в полученных спектрах. Реальная форма пика в измеренном спектре должна соответствовать его математической модели, применяемой в расчетной программе. Форма пика характеризуется отношением ширины на 1:50 максимума к ширине на 1:2 максимума для пика 122 кэВ. Форму фотопика считают удовлетворительной, если это отношение меньше 2,55.

Из-за снижения эффективности регистрации γ -излучения с ростом его энергии применение планарных детекторов ограничено областью < 400 кэВ. Использование коаксиального детектора позволяет проводить измерения как в мягком (до 400 кэВ), так и в жестком (до 1 МэВ) диапазоне энергий.

Анализы изотопного состава урановых образцов

Для анализа защищенных образцов, например, контейнеров с гексафторидом урана на обогатительном производстве применяют спектрометрию более жестких излучений (табл. 3.2) с помощью коаксиального HPGe-детектора.

Таблица 3.2

Сведения о γ -излучении изотопов урана

Изотоп	$T_{1/2}$, лет	Энергия γ -квантов, кэВ	Выход I_γ , %
^{234}U	$2,45 \cdot 10^5$	120,95	0,041
^{235}U	$7,04 \cdot 10^8$	143,8	11,0
		163,4	5,00
		185,7	57,5
		195,0	0,63
		202,2	1,10
		205,3	5,00
^{236}U	$2,34 \cdot 10^7$	112,7	0,019
^{238}U	$4,47 \cdot 10^9$	258,0	0,069
		742,8	0,095
		766,4	0,322
		786,3	0,055
		880,5	0,021
		883,2	0,021
		945,9	0,034
		1001,1	0,839

Анализ данных об излучениях изотопов урана позволяет сделать следующие выводы:

- наиболее интенсивные линии ^{235}U наблюдаются в низкоэнергетической части спектра 100...200 кэВ, а ^{238}U – в высокоэнергетической (700...1000 кэВ). Построение единой функции относительной эффективности для всего диапазона измерений затруднено и может быть осуществлено для образцов с разным обогащением путем использования программы FRAM с разными наборами параметров;
- энергии измеряемых линий сильно различаются, поэтому требования к разрешению аппаратуры невысоки, как при измерении обогащения образцов урана в диапазоне 100 кэВ (MGAU) или при анализе образцов плутония с помощью FRAM;
- квантовые выходы излучений ^{238}U очень малы, период полураспада велик ($4,47 \cdot 10^9$ лет), и для обеспечения удовлетворительной точности могут потребоваться длительные измерения;
- изотоп ^{234}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}U в анализируемых образцах. Данные о концентрации ^{234}U получают путем определения относительной интенсивности γ -линии 120,9 кэВ в спектре уранового образца.

При изготовлении тепловыделяющей сборки (ТВС) современных энергетических реакторов в настоящее время широко используют регенерированный (т. е. выделенный из облученного топлива) уран. Во время предыдущих облучений в нем, в соответствии с реакцией $^{235}\text{U}(n, \gamma)$, накапливается ^{236}U – четно-четный пороговый нуклид. Его относительная концентрация может превышать 1 %, тогда его присутствие нужно учитывать. Однако его слабое и мягкое гамма-излучение трудно поддается измерениям, и FRAM не дает информации о ^{236}U .

В регенерированном уране содержится также ^{232}U , который с периодом 68,9 лет распадается в ^{228}Th γ -линии, ^{228}Th с энергиями 238 кэВ, 583 кэВ, 727 кэВ 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 первом случае для сшивки низкоэнергетического диапазона, в котором присутствуют линии ^{235}U , и высокоэнергетического, содержащего линии ^{238}U , ключевую роль играет γ -линия U с энергией 258 кэВ. Такой подход применим для анализа образцов низкообогащенного ура-

на, поскольку в спектрах высокообогащенных образцов эта линия слишком слаба и маскируется фоном.

Во втором случае (для построения кривой эффективности в случае высокообогащенных образцов) используют γ -линии ^{228}Th . Соответствующие наборы используемых параметров: **ULoEnr** (для низкообогащенного урана) и **UHiEnr** (для высокообогащенного Урана).

Процедуры анализа и обработки пиков в программе FRAM

Программа FRAM предназначена для практического применения в условиях жестких ограничений и предусматривает выдачу только окончательных данных об изотопном составе анализируемого образца. Поэтому для изучения механизма работы программы в процессе выполнения лабораторной работы из отчета будут специально извлекаться необходимые промежуточные данные, которые будут использоваться для анализа спектров.

Процедуры поиска пиков, выбора диапазонов анализа и изотопов, подлежащих определению, управляются набором параметров (**Set Parameters**). Не все спектры обрабатываются с помощью одного набора параметров. Поэтому база данных построена так, что обеспечивает возможность применения разных наборов.

Первая стадия анализа – **внутренняя калибровка**. Определяются зависимости (канал/энергия), (ПШПВ/энергия), (форма пика/энергия), причем используются специально выбранные пики в измеренном спектре. Для внутренней калибровки служат анализируемые спектры.

Прежде всего, 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 и запоминается вместе с их энергиями E . Обработка этих данных методом наименьших квадратов дает коэффициенты в формуле, описывающей соотношение (ПШПВ/энергия):

$$(\text{ПШПВ})^2 = A_1 + A_2 \cdot E + A_3 \cdot E^{-1}, \quad (3.1)$$

где E – энергия, кэВ.

Эта формула используется в дальнейшем для обработки всех пиков.

Форма гамма-пика описывается выражением

$$N_i = N_0 [e^{\alpha(x_i - x_0)^2} + T(x_i)], \quad (3.2)$$

где N_i – число отсчетов в канале x , после вычитания фона («чистый» счет);

N_0 – амплитуда пика; x_0 – центр пика;

$\alpha = 4 \cdot \text{Ln}(2) \cdot (\text{ПШПВ})^{-2} = 1/(2 \cdot \sigma^2)$ – параметр, характеризующий ширину пика;

σ – стандартное отклонение для функции Гаусса;

$T(x_i)$ -функция описывающая хвост пика (функция остатка):

$$T(x_i) = [A \cdot e^{B(x_i - x_0)} + C \cdot e^{D(x_i - x_0)}] \cdot [1 - e^{0.4\alpha(x_i - x_0)^2}] \cdot \delta, \quad (3.3)$$

где A и C – амплитуды короткого и длинного хвостов;

B и D – наклоны короткого и длинного хвостов;

$\delta = 1$ при $x_i < x_0$ и $\delta = 0$ при $x_i \geq x_0$.

Пики, которые предназначаются для нахождения «хвостовых» коэффициентов, задаются в наборе параметров. Для каждого пика определяется его гауссова часть с использованием ранее полученных данных о ПШПВ, затем эта часть вычитается из канальных отсчетов N_i . Далее модель «хвоста» подгоняют к полученным результатам с помощью метода наименьших квадратов.

На второй стадии анализа для каждого анализируемого диапазона оценивается сплошной фон, создаются модели спектра, и эти модели подгоняются к «чистому» счету. Затем определяются площади под пиками, которые используются для построения функций относительной эффективности в диапазоне измерений спектра.

Эффективность в программе FRAM представляет собой вероятность регистрации детектором гамма-кванта, возникшего при распаде ядра Pu в объеме образца. Вероятность того, что квант будет зарегистрирован в фотопике, определяется вероятностями того, что он вылетит из образца в направлении детектора, не поглотится в образце и по пути из образца в детектор и вызовет импульс, эквивалентный его полной энергии. Таким образом, эффективность для FRAM есть произведение четырех вероятностей.

Кривая относительной эффективности имеет вид:

$$\text{Ln}\varepsilon = C_1 + C_2 E^{-2} + C_3 (\text{Ln}E) + C_4 (\text{Ln}E)^2 + C_5 (\text{Ln}E)^3 + C_i + C_j E^{-1}, \quad (3.4)$$

где C_i – нормировочные коэффициенты для всех изотопов кроме первого;

C_j – нормировочные коэффициенты для различных кривых относительной эффективности, кроме первой, построенных по пикам разных изотопов;

E – энергия, МэВ.

Далее, с помощью значений относительной эффективности, полученных по этой формуле, оцениваются относительные активности отдельных изотопов плутония и определяется изотопный состав образца.

Применение программы FRAM имеет следующие достоинства:

- легкую приспособляемость к условиям различных измерений без необходимости перепрограммирования;
- возможность пользователю редактировать параметры анализа;

- возможность проводить анализы самых разных образцов при содержании 2...38 % ^{240}Pu , 0,01...50 % ^{241}Am , образцов в толстостенных контейнерах, образцов с неоднородным по объему отношением Am/Pu , образцов из смеси оксидов урана и плутония при соотношениях $^{235}\text{U}/^{239}\text{Pu} = 0,005...35$ и др.

Практические задания

Задание 1. Выполнить измерение урановых образцов при следующих условиях:

- 1) без дополнительного экрана;
- 2) с экраном из стали толщиной 2 мм;
- 3) с экраном из стали толщиной 5 мм;
- 4) с экраном из стали толщиной 7 мм;
- 5) с экраном из стали 10...12 мм;
- 6) с экраном из свинца толщиной 1...2 мм.

Сравнить полученные результаты анализа с паспортными значениями и результатами определений с помощью программы MGAU.

Задание 2. Выполнить анализ спектров Pu, предоставленных преподавателем для обработки.

Отчет о лабораторной работе

По результатам, полученным при выполнении лабораторной работы, составляется краткий отчет, который включает:

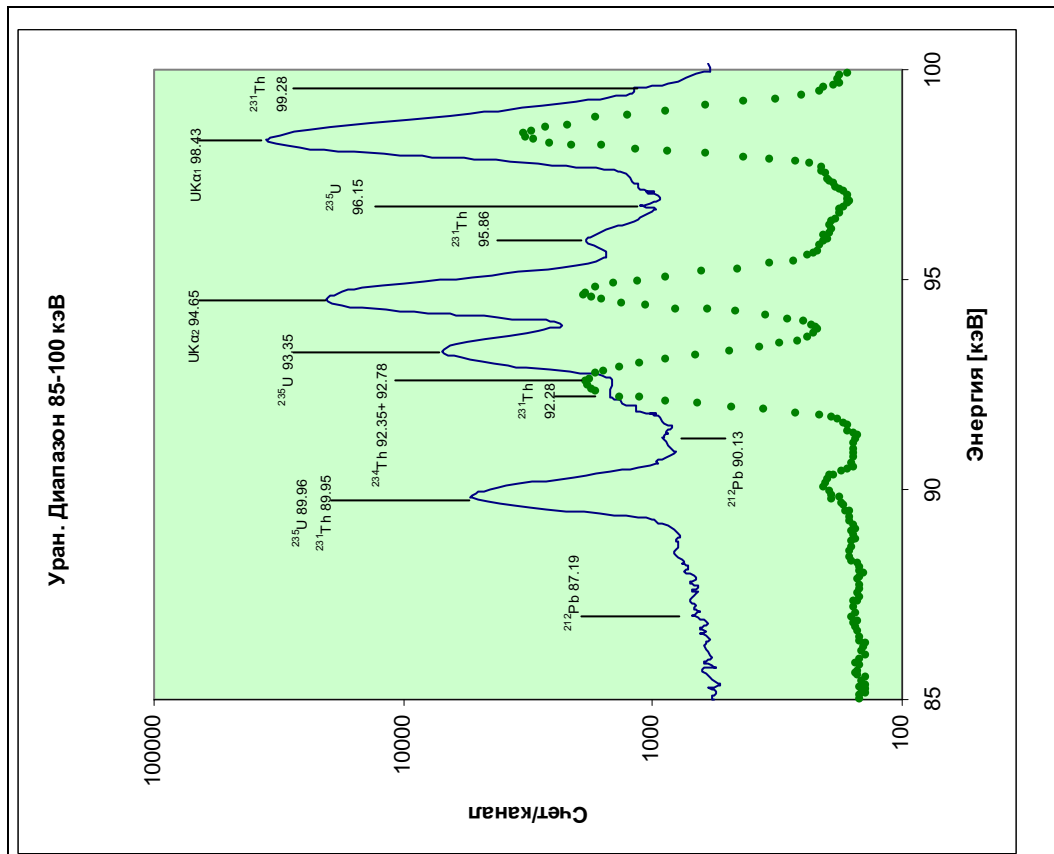
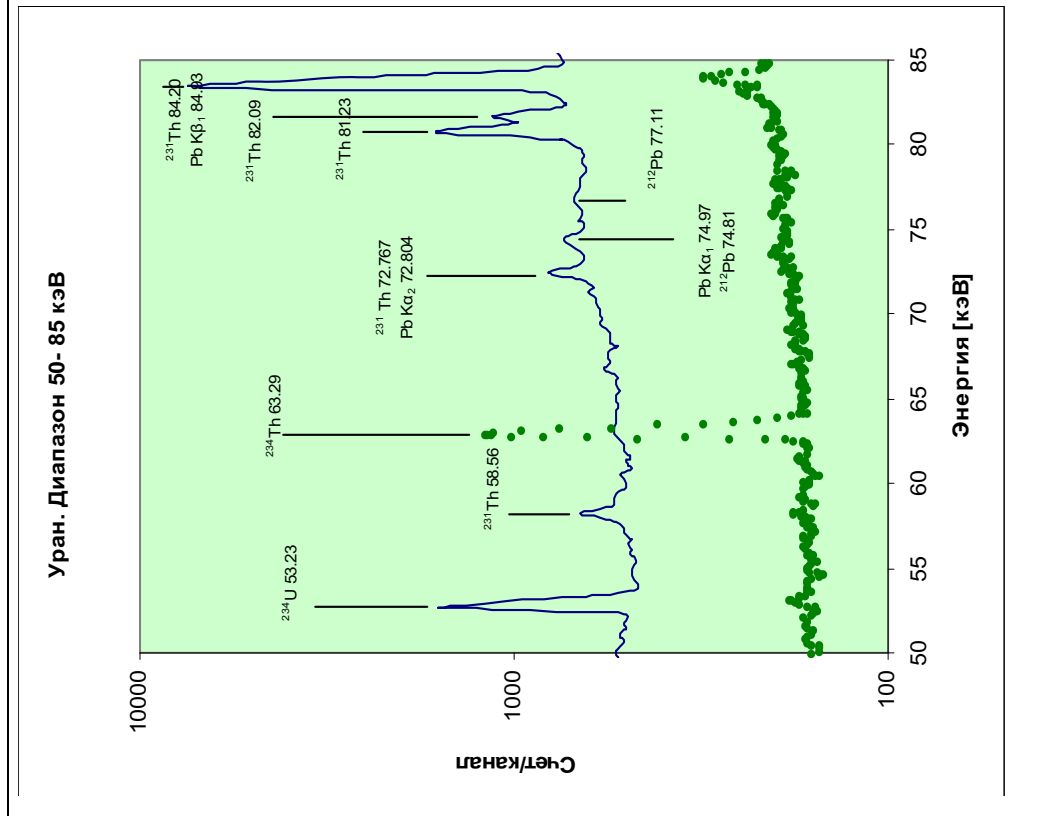
- описание измерительной установки и краткое описание возможностей программы FRAM;
- результаты измерений и анализов урановых образцов;
- сравнение результатов измерений с помощью программы MGAU и FRAM;
- результаты анализов спектров плутония;
- выводы.

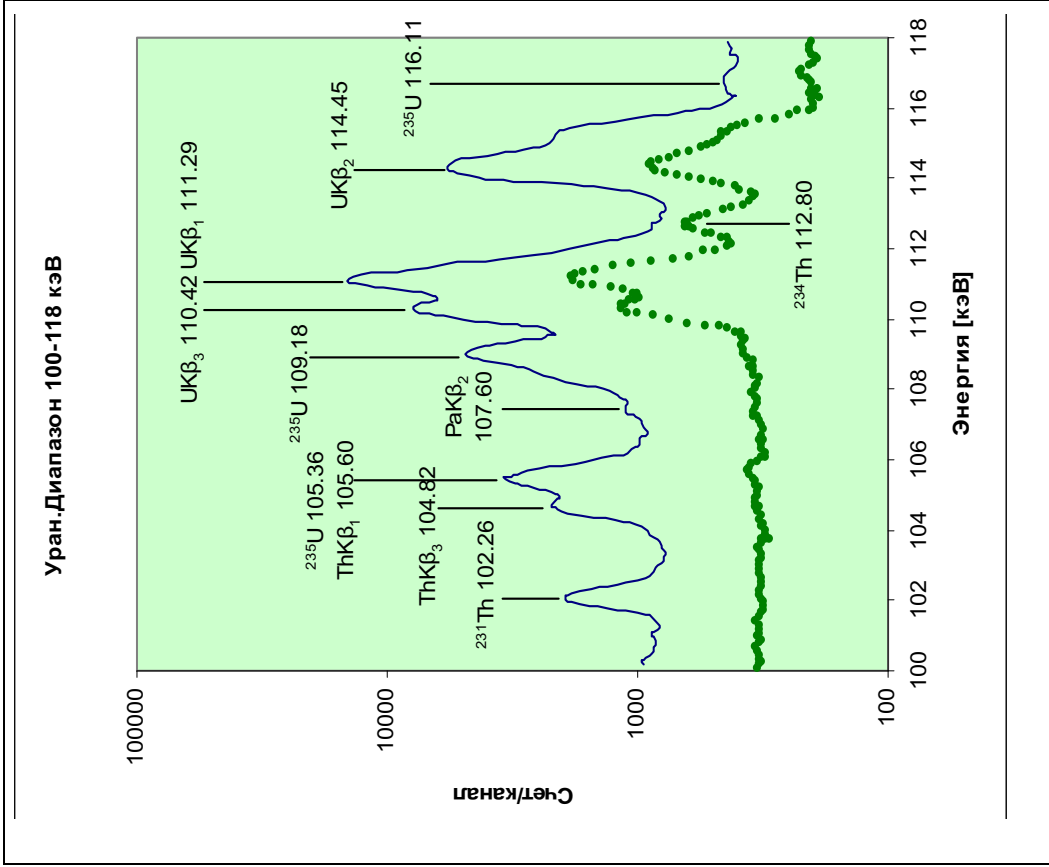
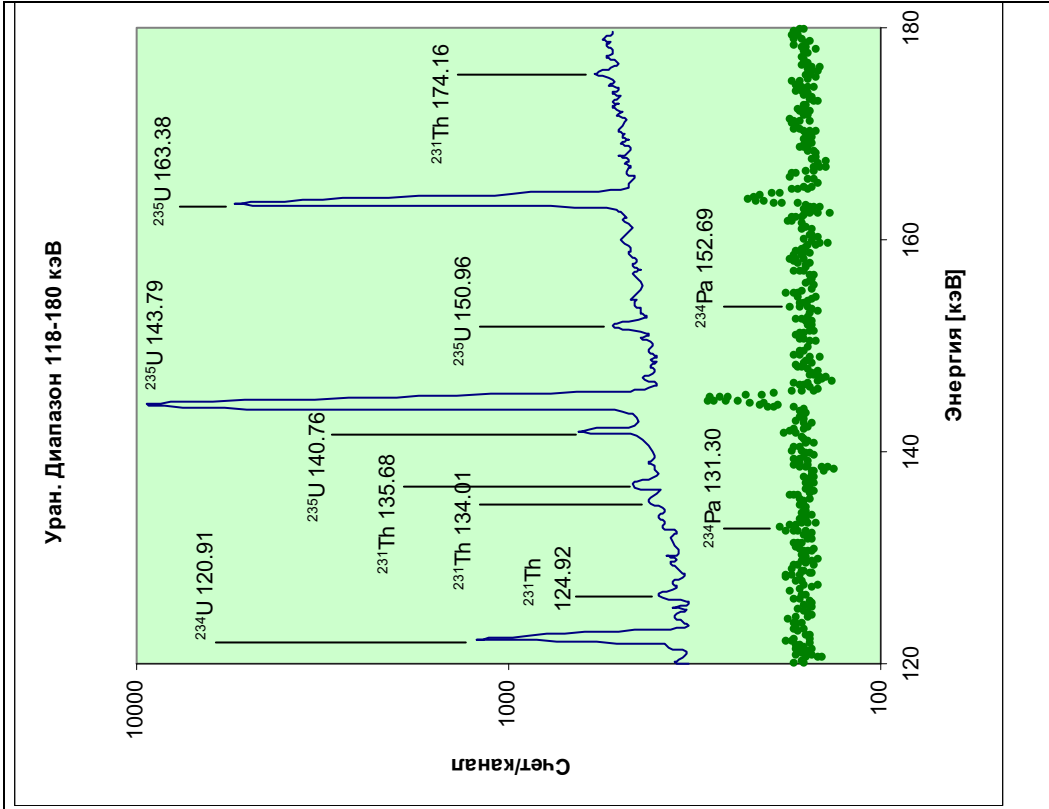
Вопросы к работе 3

1. Вещество испускает две γ -линии с энергиями E_1 и E_2 , причем $E_1 < E_2$. Сравните для них вероятности избежать поглощения внутри образца, по пути из образца в детектор и вероятность быть зарегистрированным детектором.
2. Оцените соотношение вероятности поглощения γ -излучений в стенках свинцового, стального и алюминиевого контейнеров одинаковой толщины.
3. Как изменится соотношение между интенсивностями мягкого и жесткого гамма-излучений при увеличении толщины образца ЯМ?

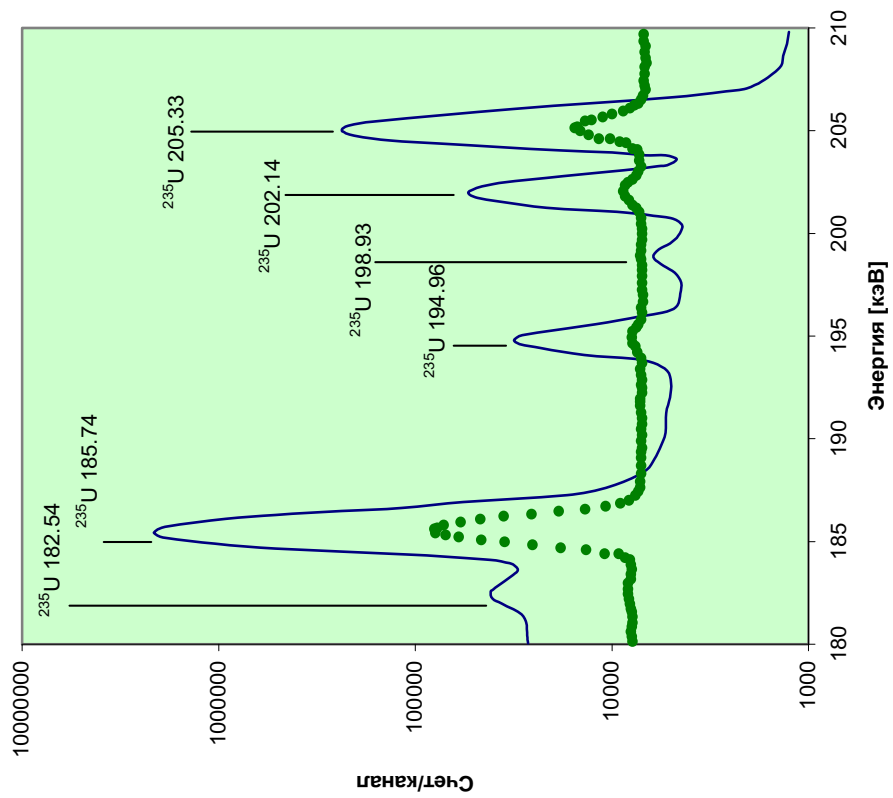
4. Почему для контроля образцов в толстостенных контейнерах используется не пленарный, а коаксиальный детектор?
5. Укажите причины асимметрии линий в измеренных спектрах. Как это учитывается в программе FRAM?
6. Какие параметры использует FRAM при моделировании пика? Откуда они берутся?
7. Перечислите основные различия в анализах изотопного состава урана и плутония.

ПРИЛОЖЕНИЕ I

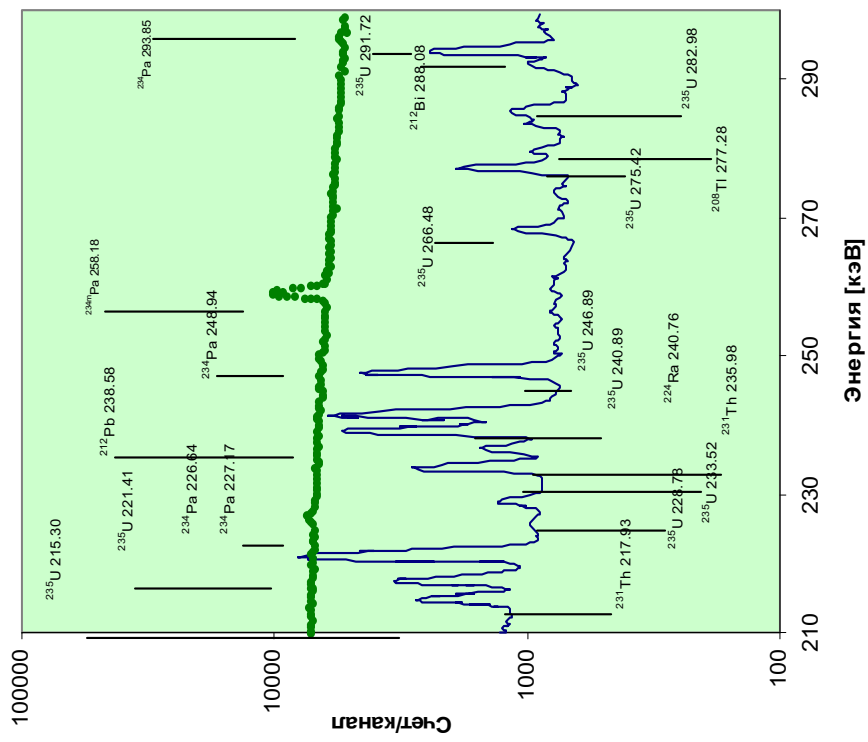


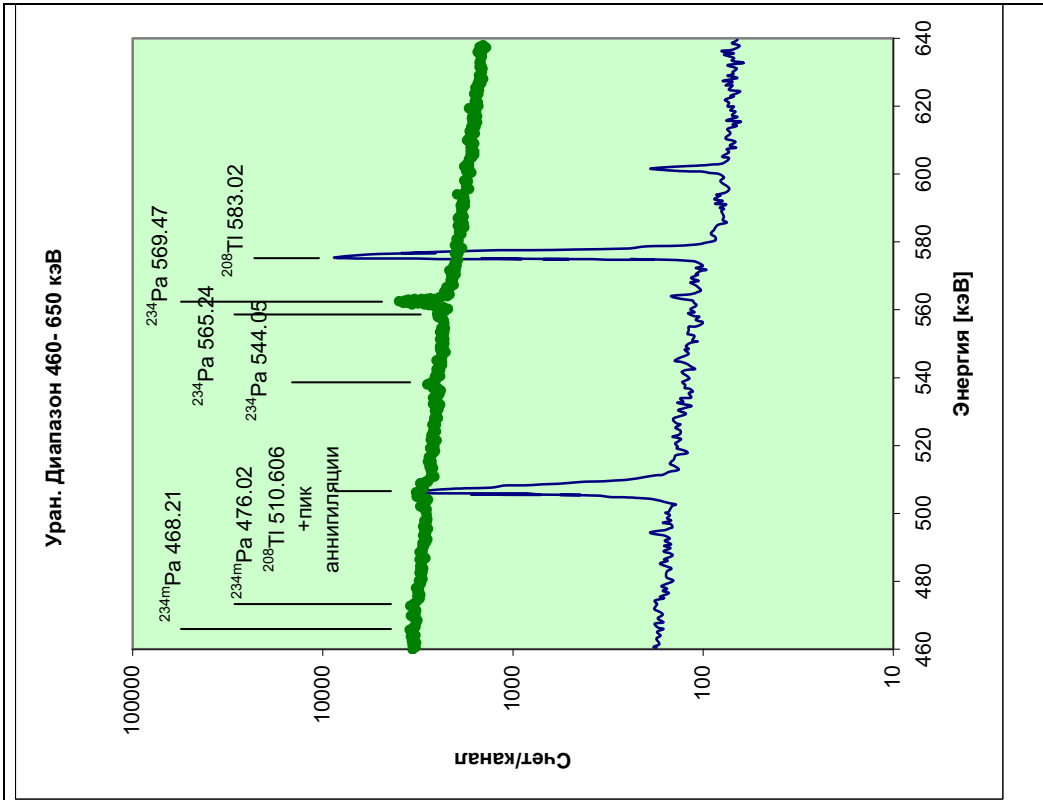
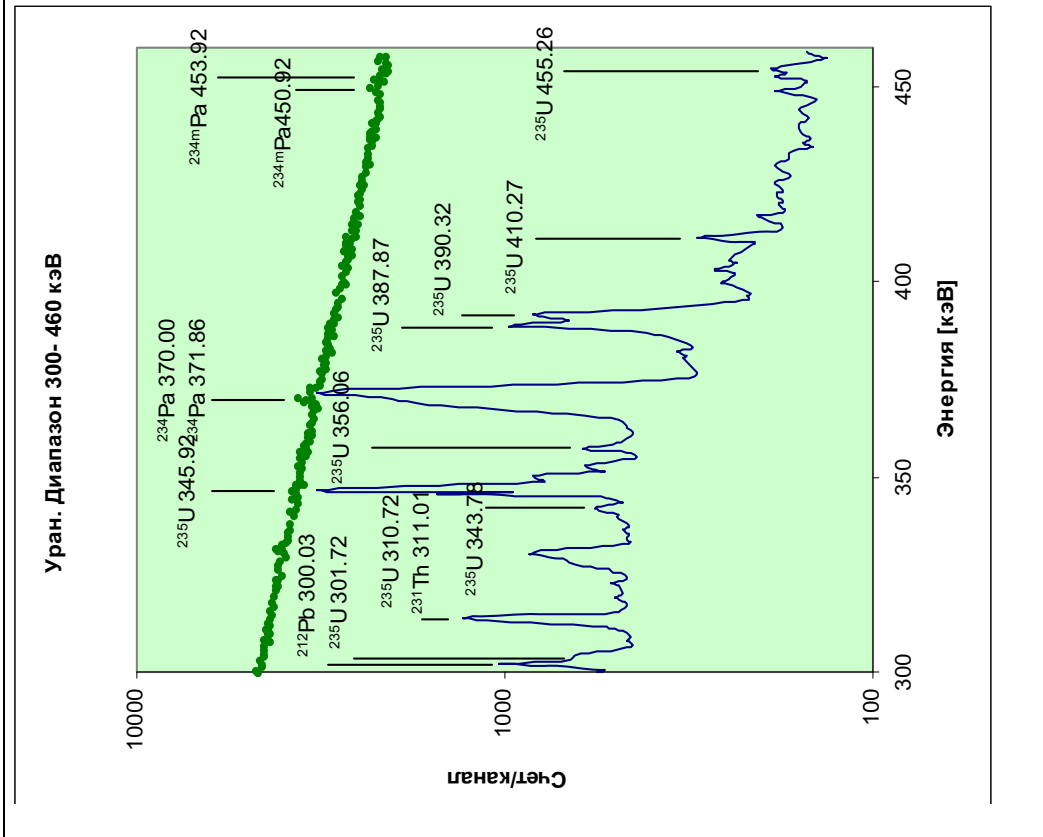


Уран. Диапазон 180-210 кэВ



Уран. Диапазон 210-300 кэВ





СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Gannink R. MGA: A Gamma-Ray Spectrum Analysys Code for Determining Plutonium Isotop Abundances. – Lawrance Livermore National Laboratory, Livermore, CA (1990).
2. Gannink R., Ruhter W., Miller P., ect. MGAU: A New Analysis Code for Measuring U-235 Enrichments in Arbitral Sample. // IAEA Symposium on International Safeguards – Austria: Vienna, 1994.
3. Inspector Portable Spetroscopy Workstation Specification Sheet. – USA, 2006.
4. Gannink R. Passive Nondestructive Assay of Nuclear Materials (PANDA). – USA: NRC, LANL, 1991.
5. S400 Genie-PC Basic Spetroscopy Software Specification Sheet. – USA, 2006.
6. Бушуев А.В., Петрова Е.В. Методы измерений ядерных материалов. Лабораторный практикум. – М: МИФИ, 2002.
7. Фролов В.В. Ядерно-физические методы контроля делящихся веществ. – М: Энергоатомиздат, 1989.

Учебное издание

МЕТОДЫ ИЗМЕРЕНИЯ ЯДЕРНЫХ МАТЕРИАЛОВ

Методические указания к выполнению лабораторных работ по курсам «Дозиметрия и защита от ионизирующих излучений ядерного реактора», «Приборы и методы физических измерений» для студентов IV–V курсов, обучающихся по направлению 140300 «Ядерная физика и технологии», специальностей 140305 «Ядерные реакторы и энергетические установки», 140309 «Безопасность и нераспространение ядерных материалов»

Составители

СИЛАЕВ Максим Евгеньевич
ЧЕРТКОВ Юрий Борисович

Научный редактор
доктор физико-математических наук,
профессор

И.В. Шаманин

Редактор

А.В. Высоцкая

Верстка

Д.В. Сотникова

Дизайн обложки

*О.Ю. Аршинова
О.А. Дмитриев*

Подписано к печати 18.11.2008. Формат 60x84/16. Бумага «Снегурочка».


Печать Хегох. Усл. печ. л. 1,74. Уч.-изд. л. 1,58.

Заказ 779. Тираж 100 экз.



Томский политехнический университет
Система менеджмента качества
Томского политехнического университета сертифицирована
NATIONAL QUALITY ASSURANCE по стандарту ISO 9001:2000



ИЗДАТЕЛЬСТВО  ТПУ. 634050, г. Томск, пр. Ленина, 30.