

УДК 621.039.1; 620.16

АКТИВАЦИОННАЯ γ -СПЕКТРОМЕТРИЧЕСКАЯ МЕТОДИКА ОПРЕДЕЛЕНИЯ МАССЫ ОБРАЗЦОВ ЯДЕРНЫХ МАТЕРИАЛОВ

Бушуев А.В., Затолокин А.С., Зубарев В.Н., Кожин А.Ф., Прошин И.М. (МИФИ)

Традиционно для неразрушающего анализа массы и изотопного состава ядерных материалов применяют комбинации двух методик — либо счет нейтронных совпадений (пассивный и активный варианты анализа) + γ -спектрометрия, либо калориметрия + γ -спектрометрия. Цель настоящей работы — продолжение исследования возможности получения информации о массе и изотопном составе ядерных материалов с помощью одной γ -спектрометрической методики.

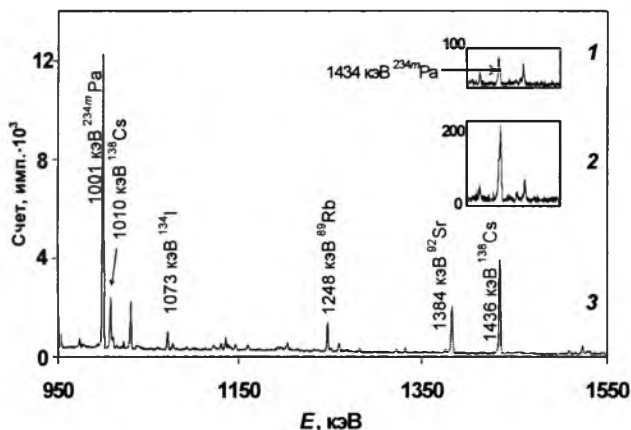
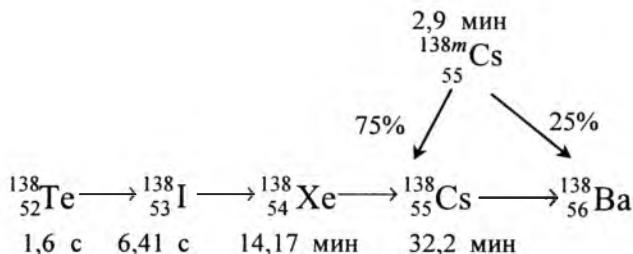
Ранее в исследованиях [1, 2] было обнаружено γ -излучение отдельных продуктов деления из образцов ядерных материалов, содержащих спонтанно делящиеся изотопы, и сделано заключение о возможности получения полной информации о массе и изотопном составе плутония путем γ -спектрометрических измерений в двух энергетических диапазонах. Такой подход (назовем его пассивным) может быть использован для анализа больших образцов (массой в сотни граммов) и тем успешнее, чем больше выгорание плутония (выше содержание четно-четных спонтанно делящихся изотопов в образцах).

В настоящей работе сделана попытка расширить область возможного применения комплексной γ -спектрометрической методики за счет использования активной (точнее, активационной) процедуры анализа с помощью относительно слабых (α, n)-источников нейтронов. Такие источники характеризуются простотой, малой стоимостью, не требуют обслуживания, не создают значительных дозовых нагрузок на персонал. При этом с помощью кратковременного облучения образцов инициируют γ -излучение короткоживущих продуктов деления, по результатам измерений которого можно определить массу ядерных материалов.

В первых опытах [3] нейтронный источник интенсивностью 10^7 с^{-1} вместе с образцом плутония или высокообогащенного урана помещали в водородосодержащую среду. После 30-минутного облучения образец извлекали и измеряли его γ -излучение на Ge-детекторе. В полученных спектрах наблюдали пики короткоживущих продуктов деления. Полученные результаты показали, что активационный анализ можно проводить с образцами урана и плутония, причем интенсивность нейтронного источника 10^7 — 10^8 с^{-1} оказалась достаточной.

Подтвердился ранее сделанный вывод [1, 2], что наилучшие условия (наибольшее число отсчетов в пике, максимальное отношение пик/фон, высокая проникающая способность излучения) наблюдаются при измерении излучения ^{138}Cs энергией 1436 кэВ (рис. 1). Период полураспада ^{138}Cs относительно мал (32,2 мин), что обеспечивает приемлемый расход времени (60—120 мин) на проведение активационного анализа.

Схема радиоактивной цепочки, ведущей к образованию ^{138}Cs , имеет следующий вид:



Р и с. 1. Спектр γ -излучения образца диоксида урана обогащением 6,5% по ^{235}U : 1 — необлученный образец; 2 — образец, облученный в кадмиевом экране; пик ^{138}Cs (1436 кэВ) наложен на пик ^{234m}Pa ; 3 — образец, облученный без кадмиевого экрана

при работе в режиме «живого» времени приводило бы к существенному различию продолжительности отдельного измерения. Из-за быстрого спада активности ^{138}Cs такое различие ведет к искажению результатов, поэтому измерения проводили в режиме реального времени (т.е. их продолжительность была одинаковой) и вносили поправки на «мертвое» время в результаты измерений каждого образца. В течение каждого отдельного измерения оно оставалось постоянным, поскольку основную загрузку спектрометрического тракта создавало собственное γ -излучение образца.

Для определения диапазона массы образцов, поддающихся измерению с помощью рассматриваемой методики, были проведены три серии опытов с цилиндрическими образцами из металлического урана с 2% ^{235}U диаметром 30 мм и из диоксида урана с 1,8% ^{235}U диаметром 54 и 96 мм. Порошок диоксида урана плотностью 7 г/см³ был получен путем дробления штатных топливных таблеток РБМК.

В каждой серии опытов использовали образцы разной массы (разной высоты), приготовленные путем добавления в контейнер дополнительных слоев исследуемого материала. При измерениях каждый новый слой располагали на большем удалении от детектора, его излучение испытывало растущее ослабление из-за поглощения на пути в детектор, поэтому вклад слоев в измеренную интенсивность излучения ^{138}Cs постепенно уменьшался. Это ограничивало высоту и массу поддающегося измерению образца.

Активность ^{138}Cs определяется скоростью не только распада, но и накопления из материнского изотопа ^{138}Xe . Поэтому в опытах строго выдерживали временной режим, чтобы не вносить разные поправки: одинаковую длительность облучения всех образцов, одинаковую паузу между окончанием облучения и началом измерения и одинаковое время измерения.

Загрузка спектрометрического тракта при измерениях с разными образцами отличалась в несколько раз, что

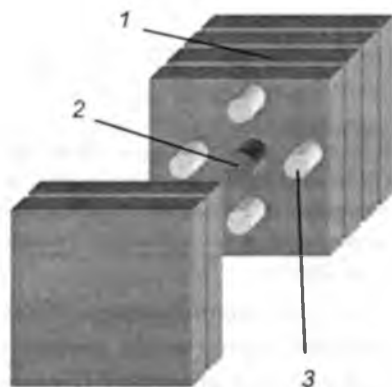
Следует заметить, что энергия γ -излучения ^{138}Cs приходится на область минимального поглощения γ -излучения ураном (и плутонием) и, следовательно, обладает максимальной проникающей способностью.

В фоне, создаваемом излучением продуктов распада ^{238}U , присутствует пик $^{234\text{m}}\text{Pa}$ (1434 кэВ), энергия которого близка к энергии пика ^{138}Cs (1436 кэВ). Это, с одной стороны, при малой интенсивности источника нейтронов может осложнять обработку результатов измерений, но, с другой, было использовано для моделирования условий измерений излучения ^{138}Cs (для исследования самопоглощения излучения внутри образца и др.) без облучения образцов.

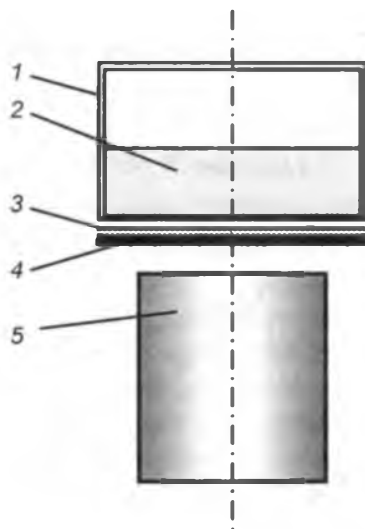
Скорость набора информации в пике 1436 кэВ ^{138}Cs , а также минимальная поддающаяся измерению масса образца зависят от эффективности детектора. Кристаллы германия, используемые для изготовления детекторов, имеют квазицилиндрическую форму и разную площадь поперечного сечения. В описываемых опытах применяли два детектора из особо чистого германия разной геометрии эффективностью 10 и 25%. Их энергетическое разрешение для линии 1332 кэВ составляло 1,8 и 1,75 кэВ соответственно.

Устройство для облучения образцов (рис. 2) представляло собой куб из органического стекла с ребром 30 см. В центре куба — цилиндрическая полость диаметром 100 мм и высотой 60 мм. На равном расстоянии от полости с четырех сторон располагали четыре Pu—Be -источника нейтронов суммарной интенсивностью $2 \cdot 10^7 \text{ c}^{-1}$. Активационные измерения с индиевыми индикаторами показали, что неравномерность поля нейтронов внутри полости не превышала 4%. Схема измерения γ -излучения ^{138}Cs облученных урановых образцов представлена на рис. 3.

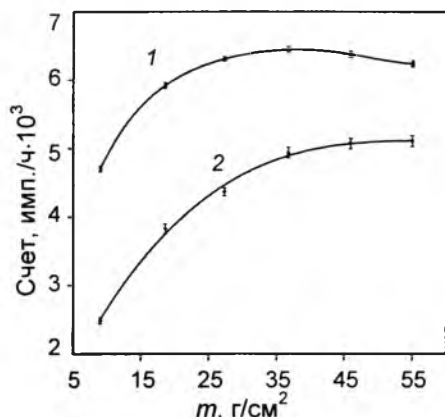
Были проведены измерения с металлическими урановыми образцами разной массы, облученными в кадмиевом экране и без него (рис. 4). Видно, что зависимость наведенной активности ^{138}Cs от массы образцов, облученных без кадмиевого экрана, ослабевает значительно раньше, чем при облучении в кадмиевом экране, что понижает верхнюю границу диапазона возможного применения активационной методики. Особенно сильно это может ограничить анализ образцов высокообогащенного урана и плутония. Наблюдаемое различие зависимости объясняется возрастанием самоэкранирова-



Р и с. 2. Схема облучательного устройства: 1 — замедлитель; 2 — образец; 3 — Pu—Be -источник нейтронов



Р и с. 3. Схема проведения измерений с диоксидом урана: 1 — алюминиевый контейнер диаметром 96 и высотой 60 мм; 2 — порошок диоксида урана; 3, 4 — свинцовый и кадмиевый фильтр соответственно для снижения загрузки измерительной системы γ -квантами низкой и средней энергией; 5 — Ge -детектор



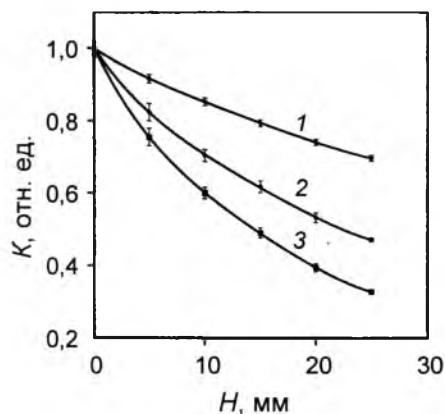
Р и с. 4. Зависимость счета в пике ^{138}Cs (1436 кэВ) от массы образца металлического урана: 1, 2 — образец, облученный без кадмиевого и в кадмиевом экране соответственно

5 мм, расстояние между образцом и детектором устанавливали с помощью дистанционирующих колец разной высоты. Для оценки влияния самопоглощения в металлических урановых образцах разной высоты сравнивали скорость счета S в пике 1434 кэВ при измерениях с реальным образцом с ожидаемой скоростью счета S^0 при отсутствии поглощения, которую вычисляли по формуле

$$S^0 = \sum_{i=1}^n S_i^0,$$

где S_i^0 — скорость счета в опыте с образцом толщиной 5 мм, помещенным на i -й высоте над детектором; n — число слоев урана, соответствующее высоте реального образца.

Разделив S на S^0 , определяли суммарное влияние поглощения γ -излучения, испускаемого отдельными слоями в образце по пути в детектор, при прохождении



Р и с. 5. Факторы, влияющие на результаты измерения γ -излучения энергией 1434 кэВ образцов ядерных материалов: 1 — геометрия; 2 — самопоглощение; 3 — суммарный эффект

ния образца от тепловых нейтронов по мере увеличения его объема. Для эпикадмиевых нейтронов эффекта самоэкранирования нет, поэтому при анализе массы образцов с помощью активационной методики следует окружать образцы кадмиевым экраном (кроме образцов малой массы).

Эффекты геометрии и самопоглощения фотонов совместно влияют на результаты γ -спектрометрии образцов. Чтобы разделить и оценить их влияние, были проведены специальные опыты. Влияние геометрии на результаты измерений оценено в опытах с образцом, помещавшимся на разной высоте над поверхностью детектора. Использовали образец из металлического урана толщиной

5 мм, расстояние между образцом и детектором устанавливали с помощью дистанционирующих колец разной высоты. Для оценки влияния самопоглощения в металлических урановых образцах разной высоты сравнивали скорость счета S в пике 1434 кэВ при измерениях с реальным образцом с ожидаемой скоростью счета S^0 при отсутствии поглощения, которую вычисляли по формуле

$$S^0 = \sum_{i=1}^n S_i^0,$$

где S_i^0 — скорость счета в опыте с образцом толщиной 5 мм, помещенным на i -й высоте над детектором; n — число слоев урана, соответствующее высоте реального образца.

Разделив S на S^0 , определяли суммарное влияние поглощения γ -излучения, испускаемого отдельными слоями в образце по пути в детектор, при прохождении

через ниже расположенные слои (рис. 5). Эти результаты получены в условиях конкретного опыта. При других условиях, например, другой плотности ядерного материала эффекты могут существенно отличаться.

Результаты опытов по изучению влияния геометрии образца и самопоглощения γ -излучения на результаты анализа дали информацию, позволяющую оценить возможности как активационного, так и пассивного вариантов методики.

Следующие опыты проводили с образцами из диоксида урана, облученными в кадмиевом экране. Результаты опытов представлены на рис. 6 в виде двух кривых. Наблюдаемая нелинейная зависимость интенсивности γ -излучения ^{138}Cs от массы образца

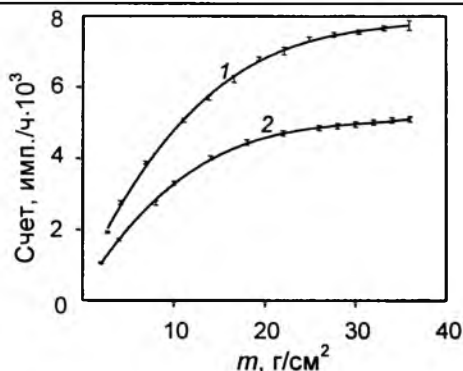
формируется под влиянием двух факторов — самопоглощения и геометрии. Влияние второго фактора сильнее в опытах с диоксидом урана, поскольку плотность этого материала была в 2,5 раза меньше, чем металла, и во столько же раз больше высота образца диоксида с эквивалентным отношением массы к площади основания контейнера. Чем больше плотность анализируемого материала, тем выше предел при измерении массы образцов. Кривая 2 на рис. 6, построенная по результатам зависимости счета импульсов в пике 1436 кэВ от массы ядерного материала $S(M)$, была использована для оценки погрешности определения массы. Для этого рассчитывали погрешность измерения счета ΔS . С помощью кривой $S = f(M)$ находили значения M , $M + \Delta M$ и $M - \Delta M$, соответствующие S , $S + \Delta S$, $S - \Delta S$. Полученные значения ΔM использовали для описания зависимости погрешности массы от массы (рис. 7).

При увеличении массы зависимость $S = f(M)$ ослабевает вследствие роста самопоглощения излучения и геометрического фактора. Если принять, что погрешность результата определения массы не должна превышать 3% (1σ), можно установить предельную высоту и массу образца. Для образцов из диоксида урана диаметром 96 мм максимальная масса составила около 2000 г. При дальнейшем увеличении высоты и массы образца интенсивность γ -излучения энергией 1436 кэВ изменяется слабо, что не позволяет с нужной точностью различать массу.

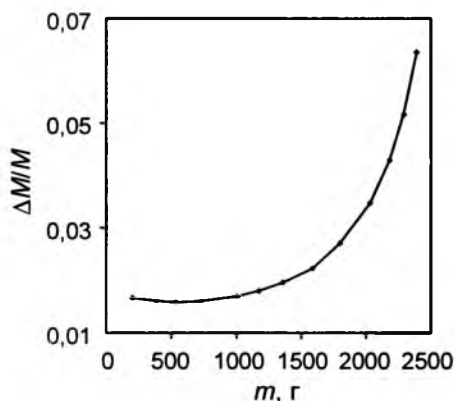
Соотношение между результатами измерения образцов из диоксида урана одинаковой толщины диаметром 54 и 96 мм отличалось не более чем на 1—2%, что позволило сделать вывод о подобии кривых на рис. 6. Это в свою очередь позволило предположить, что калибровочный график $S = f(M)$, построенный с помощью набора образцов из какого-либо ядерного материала, затем можно использовать для анализа образцов из того же материала других поперечных размеров и формы. Для этого необходимо выполнить перенормировку с помощью двух образцов одинаковой толщины, один из которых служит для построения графика, другой принадлежит к числу новых исследуемых.

Рассмотрение совокупности результатов исследования привело к следующим выводам:

существует реальная возможность определения массы урана путем измерения интенсивности γ -излучения ^{138}Cs энергией 1436 кэВ, образующегося в результате облучения образцов нейтронами Pu—Be-источников интенсивностью 10^7 — 10^8 с $^{-1}$. При благоприятной геометрии измерений, которая определяется размерами и фор-



Р и с. 6. Зависимость счета в пике ^{138}Cs (1436 кэВ) от массы образца диоксида урана, облученного в кадмиевом экране: 1, 2 — образец диаметром 96 и 54 мм соответственно



Р и с. 7. Зависимость погрешности единичного измерения от массы образца

мой образцов, диапазон применения методики может простирается от десятков граммов слабообогащенного урана (десятки долей грамма ^{235}U) до нескольких килограммов урана любого обогащения;

для измерений могут быть использованы коаксиальные германиевые детекторы;

массу урана в образце находят с помощью калибровочного графика. Как показали опыты, погрешность определения массы урановых образцов может достигать 1—3% при длительности облучения 30—60 мин и такой же продолжительности измерения;

погрешность определения массы урана уменьшается с увеличением обогащения урана, так как возрастает число делений и интенсивность γ -излучения ^{138}Cs ;

измерения γ -излучения образца в области пика 1436 кэВ и в диапазоне ниже 1000 кэВ (область применения программы FRAM) могут дать информацию о массе и изотопном составе образца;

толщина стенок контейнеров, содержащих ядерные материалы, ограничивает возможность определения изотопного состава, но не массы, поскольку для измерения массы используется высокоэнергетическое γ -излучение;

активационная γ -спектрометрическая методика может быть применена для анализа металлических урановых образцов, образцов из порошков, микротвэлов и гексафторида урана. Возможность ее применения для анализа плутониевых образцов будет специально исследована.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Бушуев А.В., Зубарев В.Н., Кожин А.Ф. и др. γ -Спектрометрический контроль больших плутониевых образцов. — Атомная энергия, 2001, т. 90, вып. 6, с. 487—490.
2. Bushuev A.V., Bosko A.L., Zubarev V.N. et al. Development of the method for characterization of samples containing spontaneously fissioning nuclides using fission products gamma-spectrometry. — J. Nucl. Mat. Management, 2002, v. XXXI, № 1, p. 59—62.
3. Бушуев А.В., Зубарев В.Н., Прошин И.М. Возможность активационных γ -спектрометрических измерений для определения массы ядерных материалов в образцах. — Атомная энергия, 2002, т. 93, вып. 4, с. 286—290.

Поступила в Редакцию 28.02.03

УДК 621.384.6

ШИРОКОАПЕРТУРНЫЕ УСКОРИТЕЛИ ЭЛЕКТРОНОВ*

Аброян М.А., Косоголов С.Л., Шведюк В.Я.

(НТЦ «Энергия» ФГУП «НИИЭФА им. Д.В. Ефремова»)

Широкоапертурные ускорители электронов — новый класс ускорителей, обзаванный своим появлением развитию техники мощных газовых лазеров с самостоятельным разрядом. В лазерах они выполняют функцию устройства ионизации, обеспечивая синхронное облучение быстрыми электронами объема активной среды

*Журнальный вариант доклада на 18-й Российской конференции по ускорителям заряженных частиц RuPAC-2002 (октябрь 2002 г., Обнинск).