

грузкой на основе обедненного урана [2]. Основной вывод из рассмотренного состоит в отсутствии ухудшения этих параметров после пяти рециклов при использовании начальной загрузки из облученного топлива РБМК с включением америция и кюрия по сравнению с начальной загрузкой на основе обедненного урана с плутонием из облученного топлива РБМК.

Итак, основные причины, по которым следует отсрочить переработку облученного топлива РБМК-1000 (как и ВВЭР-1000), следующие:

замыкание топливного цикла тепловых реакторов экономически невыгодно, так как затраты на смешанное уран-плутониевое топливо примерно в 8 раза выше, чем на стандартные урановые ТВС;

в облученном топливе всех РБМК-1000 за 2005—2040 г. накапливается ~ 70 т плутония (в ВВЭР-1000 80 т), использование которого необходимо для создания начальных загрузок быстрых реакторов при развитии будущей крупномасштабной ядерной энергетики;

не потребуются специально только для РБМК развивать технологию окончательного захоронения отработавшего топлива в геологические формации в противоречии со стратегическими целями радиационно-эквивалентного захоронения отходов и создания энергетики на быстрых реакторах с плутонием;

в связи с долговременным откладыванием переработки облученного топлива надбавка к текущим тарифам АЭС вследствие эффекта дисконтирования невелика ($\leq 1\%$).

Таким образом, выполняются моральные обязательства перед будущими поколениями: накапливаются средства для решения оставленных нами проблем, создается энергетика, не имеющая ограничений по топливным ресурсам.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. ТЭО концепции РФ по обращению с ОЯТ. Приложение 1 к концепции обращения с ОЯТ. М., Минатом, 1999. 19 с.
2. Белая книга ядерной энергетики. Под общ. ред. Е.О. Адамова. 1-е изд. М., НИКИЭТ, 1998.
3. Основные направления НИОКР в промышленности ядерного топливного цикла за рубежом в 1996 г. М., ЦНИИатоминформ, 1997.
4. Technical Reports, Ser. № 241. Vienna: IAEA, 1984. 503 p.
5. The European Activation File: EAF-97, Biological and Transport Libraries.
6. Лопаткин А.В. Программа ВЛС для расчета выгорания топлива с учетом сложных цепочек взаимопревращений нуклидов. — Вопросы атомной науки и техники. Сер. Физика и техника ядерных реакторов, 1985, вып. 9, с. 54—56.
7. World Nuclear Industry Handbook. Supplement to Nucl. Engng Intern., 1999.
8. Адамов Е.О., Ганев И.Х., Лопаткин А.В. и др. Трансмутационный топливный цикл в крупномасштабной ядерной энергетике России. М., НИКИЭТ, 1999. 252 с.

Поступила в Редакцию 25.09.2000

УДК 543.53

ИСПОЛЬЗОВАНИЕ ПРОМЕЖУТОЧНЫХ НЕЙТРОНОВ ДЛЯ НЕЙТРОННО-АКТИВАЦИОННОГО АНАЛИЗА ОБРАЗЦОВ БОЛЬШОЙ ТОЛЩИНЫ

Говор Л.И., Демидов А.М., Дикарев В.С., Куркин В.А. (РНЦ «Курчатовский ин-т»)

В настоящее время, несмотря на разнообразие методов определения элементного и изотопного состава веществ, отмечается потребность в разработке стандартных методов анализа для толстых (до 10 г/см^2) образцов без разрушения и изменения физико-химических свойств, исключающих их дальнейшее использование и повторение анализа. Массивный образец увеличивает представительность анализа, а взятие проб из него бывает недопустимо. Интерес представляет как нахождение малых примесей, так и определение содержания основных компонентов.

Сравнительно высокая проникающая способность γ -квантов и нейтронов создает предпосылки для анализа образцов большой толщины. Эти виды излучения уже широко применяют в нейтронно-активационном (по задержанному γ -излучению) [1] и нейтронно-радиационном анализе (по мгновенному γ -излучению) [2] с использованием тепловых нейтронов. Однако определению элементного и изотопного состава толстых образцов мешает эффект самоэкранирования внутренних областей, который особенно существен при наличии в них элементов (изотопов) с большим сечением захвата тепловых нейтронов. Это могут быть как элементы (изотопы), являющиеся основой образца, так и некоторые примеси. К тому же наличие таких элементов, если они имеют интенсивное γ -излучение, мешает регистрации характеристического излучения других элементов образца. В попытках обойти отмеченные трудности было обращено внимание на область промежуточных нейтронов.

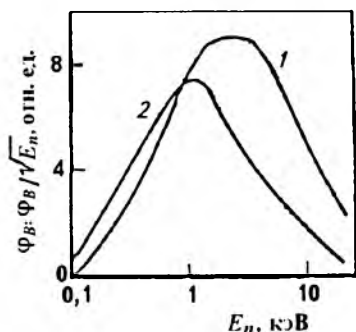
Промежуточные нейтроны имеют энергию от 1 до 500 кэВ. Эту область условно можно разбить на два диапазона: с неперекрывающимися и перекрывающимися вследствие доплер-эффекта резонансами. В настоящей работе рассматривается первый диапазон. Нейтроны преимущественно энергии такого диапазона можно получить фильтрацией нейтронного потока реактора с помощью ^{10}B толщиной ~ 1 см.

Поглощение толстым образцом нейтронов непрерывного спектра при наличии одного резонанса теоретически было рассмотрено еще в 30-х гг. [3]. Было показано, что после некоторого снижения удельной радиоактивности, возникающей при поглощении нейтронов в первых слоях толстого образца, далее наблюдается ее слабая зависимость для внутренних слоев. По мере заглубления расширяется участок спектра нейтронов, который эффективно вносит вклад в активацию образца. Центральная часть резонанса уже не играет существенной роли вследствие эффекта самоэкранирования. Отмеченная зависимость при активации толстых образцов создает предпосылки в использовании для их анализа промежуточных нейтронов в диапазоне неперекрывающихся нейтронных резонансов. В действительности ход послышной активации будет более сглаженным при наличии нескольких резонансов разной высоты и изотропном поле нейтронов. Область большой энергии промежуточных нейтронов, где резонансы перекрываются, не создает трудностей, поскольку усредненное сечение захвата нейтронов здесь небольшое и соответственно самоэкранирование невелико.

При работе с промежуточными нейтронами непрерывного спектра в области неперекрывающихся резонансов должна быть независимая активация различных элементов (изотопов), так как их резонансы, как правило, не совпадают по энергии и они взаимодействуют с разными участками нейтронного спектра. Поскольку сечение захвата нейтронов между резонансами мало, то фильтр из одного элемента или наличие этого элемента в образце будет слабо влиять на анализ другого элемента (изотопа).

При разработке методики анализа на промежуточных нейтронах образцы облучали в центральном канале исследовательского уран-графитового реактора Ф-1 РНЦ «Курчатовский ин-т», где плотность потока тепловых нейтронов $\sim 1,5 \cdot 10^9 \text{ с}^{-1} \cdot \text{см}^{-2}$. В используемой геометрии поле нейтронов является изотропным. Исследуемые образцы помещали в тефлоновый или кадмиевый пенал ($\varnothing 12 \times 50$ мм), окруженный аморфным ^{10}B толщиной ~ 1 см. На рис. 1 показан спектр нейтронов реактора (в качестве исходного принят ферми-спектр $\varphi \sim 1/E_n$) после его фильтрации такой толщиной ^{10}B φ_B (рассмотрен случай перпендикулярного падения нейтронов на фильтр). Если сечение активации образца имеет зависимость $\sigma_a \sim 1/\sqrt{E_n}$, то возникающая активность

A будет пропорциональна интегралу $\int (\varphi_B / \sqrt{E_n}) dE_n$. Зависимость $\varphi_B / \sqrt{E_n}$ от E_n также показана на рис. 1. Из рис. 1 следует, что основной вклад в активацию будет вносить область нейтронов энергией от 100 эВ до десятков кэВ. В этой области для ядер атомной массой $M \sim 100$ доплер-уширение резонансов $\Delta = 2(m_n E_n kT / M)^{1/2}$ еще не приводит к



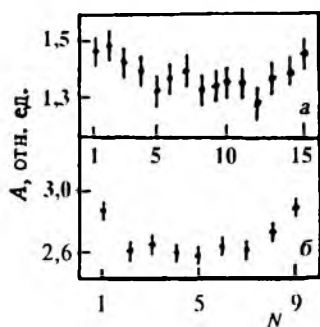
Р и с. 1. Спектр промежуточных нейтронов реактора после прохождения фильтра из ^{10}B толщиной 1 см φ_B (1) и зависимость $\varphi_B/\sqrt{E_n}$ от энергии нейтронов E_n (2)

и ^{115}Cd оно равнялось 2,4:1. Эти отношения будут зависеть от типа реактора и места облучения в активной зоне.

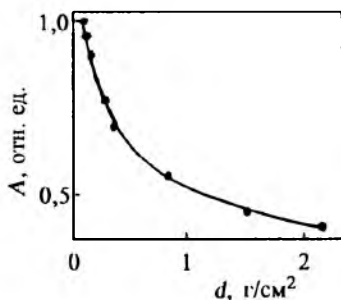
Для нахождения распределения послойной удельной активности по толщине образца проведены следующие эксперименты:

в кадмиевом пенале толщиной 0,5 мм облучены 15 слоев кадмия толщиной 120 мг/см^2 каждый, найденная зависимость послойной удельной активности от глубины залегавшего слоя показана на рис. 2, а;

в том же пенале облучены девять слоев золота толщиной 61 мг/см^2 каждый, результаты для послойной активности показаны на рис. 2, б.



Р и с. 2. Распределение удельной активности в 15 пластинах кадмия (а) и девяти пластинах золота (б) (N — номер пластины)



Р и с. 3. Зависимость удельной активности пластины кадмия от толщины

перекрытию резонансов, так при энергии резонанса $E_r \sim 1 \text{ кэВ}$ $\Delta \sim 1 \text{ эВ}$, среднее расстояние между резонансами составляет $\sim 10 \text{ эВ}$.

Для проведения экспериментов были выбраны следующие режимы: 2 ч облучение, 20 ч выдержка и 15—30 мин измерение. Такое время не является критическим и оптимальным. Оно определено условиями работы на реакторе. Для спектрометрии γ -квантов применяли германиевый детектор эффективностью 25% и разрешением 1,8 кэВ при энергии 1,2 МэВ. Расстояние между образцом и поверхностью детектора составляло 25 мм. Отношение радиоактивности образца золота толщиной 61 мг/см^2 в тепловом потоке (на расстоянии $\sim 5 \text{ см}$ от ^{10}B) и внутри пенала, окруженного ^{10}B , составляло 42:1, для кадмия толщиной 400 мг/см^2 по радиоактивности

Для нахождения зависимости удельной активности от толщины образца были облучены в тefлоновом пенале кадмиевые пластины различной толщины и площадью примерно $5 \times 10 \text{ мм}$. Найденная зависимость показана на рис. 3. Результаты, показанные на рис. 1—3, подтверждают возможность исследования толстых образцов с использованием промежуточных нейтронов. Для уменьшения вклада внешнего слоя образца в его общую активность можно использовать фильтры из соответствующих элементов.

Зависимость, показанную на рис. 3, необходимо знать для каждого исследуемого элемента при количественном анализе, поскольку толщина эталона может не совпадать с толщиной суммарного слоя элемента в образце. Эта зависимость, в основном, будет определяться спектром промежуточных нейтронов.

Для проверки независимости активации элемента от присутствия других элементов при анализе с промежуточными нейтронами сформированного спектра проведены эксперименты, результаты которых следующие (использовались тefлоновые контейнеры):

кадмиевый фильтр толщиной 0,5 мм не влияет на активность золотого и палладиевого образцов в пределах погрешности измерений 2%. Отсюда же следует, что внутри пенала тепловые нейтроны не появляются;

размещение образца золота размером $3 \times 4 \text{ мм}$, массой 40 мг в центре цилиндров размером $\varnothing 10 \times 10 \text{ мм}$

из железа и латуни (толщина фильтрационного слоя в среднем 4—5 мм) привело к уменьшению его активности на 9 и 6% соответственно, для цилиндра из кадмия на 18% (погрешность эксперимента 2%);

размещение образца палладия в том же цилиндре из латуни в пределах погрешности эксперимента (20%) не повлияло на его активацию;

окружение образца кадмия площадью 25 мм² и массой 85 мг слоем NdCl толщиной 5 мм на $7 \pm 2\%$ снизило активность ^{115}Cd ;

присутствие вольфрама в образце из смеси порошков $\text{CdSO}_4 + \text{Fe}$ и $\text{CdSO}_4 + \text{Fe} + \text{W}$ (когда сохранялся общий объем порошка, равный $\varnothing 10 \times 10$ мм, и содержание кадмия в смеси) не повлияло в пределах 2% на радиоактивность кадмия;

уменьшение массы CdSO_4 (471, 240 и 80 мг при одновременном увеличении массы железа в смеси порошков $\text{CdSO}_4 + \text{Fe}$ для сохранения геометрии образца $\varnothing 10 \times 10$ мм) увеличило удельную активность ^{115}Cd в соответствии с зависимостью, показанной на рис. 3, т.е. повышение содержания железа не повлияло на активацию кадмия.

Наблюдаемое в экспериментах некоторое уменьшение активации одних элементов при фильтрации нейтронов другими элементами, по-видимому, связано с возможным перекрытием нейтронных резонансов, вероятность которого для пары золото—кадмий значительно больше, чем для сочетаний золото—железо или золото—латунь. Не исключено и влияние эффектов рассеяния нейтронов.

Для рассмотрения перспектив анализа того или иного элемента на промежуточных нейтронах желательно знать сечение их активации. Эти сечения будут зависеть от спектра промежуточных нейтронов и толщины элемента. Для некоторых элементов в случае сформированного в настоящей работе спектра промежуточных нейтронов реактора и заданной толщины такие сечения $\sigma_{\text{пн}}^a$ приведены в таблице. Сечения даны в относительных единицах, причем для золота принято условно значение 5000. В этой же таблице приведены усредненные сечения захвата нейтронов вблизи $E_n = 2$ кэВ и при 0,025 эВ [4]. При отсутствии сведений о сечениях при $E_n = 2$ кэВ они приводятся для другой энергии. Учитывая условия, при которых получены экспериментальные данные $\sigma_{\text{пн}}^a$ (непрерывный спектр нейтронов после фильтрации ^{10}B , зависимость от толщины образца), находим для исследуемых элементов удовлетворительное согласие сечений при энергии 2 кэВ с относительными величинами $\sigma_{\text{пн}}^a$. Зависимость относительных величин $\sigma_{\text{пн}}^a$ от типа реактора должна быть слабой, так как ферми-спектр в первом приближении сохраняется.

Сечение активации для некоторых элементов при их облучении промежуточными нейтронами реактора с фильтром из ^{10}B толщиной 1 см

Элемент	Толщина образца, г/см ²	Излучающий изотоп	$\sigma_{\text{пн}}^a$ отн. ед.	$\sigma_{\text{пн}}^a$, мб	
				$E_n = 2$ кэВ	$E_n = 0,025$ эВ
1	2	3	4	5	6
Na	0,11	^{24}Na	16	—	530
K	0,096	^{42}K	770	22 (24 кэВ)	1300
Cr	0,13	^{51}Cr	20	—	15 000
Cu	0,84	^{64}Cu	1760	10 (10 кэВ)	4500
Zn	1,00	^{69}Zn	100	10	100
Br	0,083	^{82}Br	4700	700 (20 кэВ)	2700
Mo	0,42	^{99}Mo	600	500	130

Окончание таблицы

1	2	3	4	5	6
Pd	0,62	¹¹¹ Pd	740	600	8500
Cd	0,43	¹¹⁵ Cd	880	500	340
Sn	0,38	¹¹³ Sn	130	228 (24 кэВ)	1000
Sn	0,38	¹¹⁷ Sn	150	200 (10 кэВ)	140
Pr	0,18	¹⁴² Pr	870	500	11 500
Sm	0,31	¹⁵³ Sm	2700	1700 (5 кэВ)	206 · 10 ³
Gd	0,23	¹⁵⁹ Gd	1880	1000	2200
W	0,98	¹⁸⁷ W	1660	600	37 900
Re	2,06	¹⁸⁸ Re	4987	5000	76 400
Au	0,92	¹⁹⁸ Au	5000	5000	98 650
Pt	0,11	¹⁹⁷ Pt	1870	—	740
Pt	0,11	¹⁹⁹ Pt	880	1000	3660

Примечание. Погрешность $\sigma_{\text{пр}}^{\text{ст}}$ составляет 5—10%.

Изложенная методика опробована на сплавах золота, используемых для зубных коронок и украшений. Образцы площадью 38 и 24 мм², массой 207 и 113 мг соответственно облучали в тefлоновом контейнере, окруженном ¹⁰B, совместно с золотыми и медными эталонами, имеющими толщину, близкую к ожидаемой в исследуемых образцах. Содержание золота в образцах найдено равным 155±2 и 53±2 мг, что составляет 75 и 46% их массы соответственно. Содержание меди по аннигиляционной линии 511 кэВ найдено равным 23±3 и 34±3%. Одновременно облучили девять позолоченных контактов от радиосхем, в которых найдено 6±0,2 мг золота и 660±10 мг меди при общей массе 672 мг, что составляет концентрацию золота 9 мг/г.

Таким образом, использование непрерывного спектра нейтронов реактора в области неперекрывающихся нейтронных резонансов представляет несомненный интерес для неразрушающего элементного и изотопного анализа толстых образцов. В этом случае наблюдается почти постоянная удельная активность основных элементов во внутренних слоях образца и во всем образце при использовании предварительных фильтров из этих элементов. На активацию данного элемента (изотопа) слабо влияет наличие других, в том числе и основных элементов образца по причине резонансного характера поглощения каждым элементом своих ограниченных участков нейтронного спектра. В рассмотренном методе нет больших флюктуаций сечений активации, характерных для тепловых нейтронов, которые приводят к высокой избирательности для отдельных элементов (изотопов), но ограничивают возможность одновременного элементного анализа. Тем не менее избирательность по периоду полураспада и индивидуальности спектра γ -квантов сохраняется. В некоторых случаях усиливается различие в сечении активации между тяжелыми и легкими элементами по сравнению с использованием тепловых нейтронов. Изменение при переходе от тепловых к промежуточным нейтронам соотношения чувствительности анализа между разными элементами (изотопами) открывает новые возможности анализа.

Работа поддержана РФФИ (проект № 99-03-33218).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Кузнецов Р.А. Активационный анализ. М.: Атомиздат, 1974. 344 с.
2. Гума В.И., Демидов А.М., Иванов В.А., Миллер В.В. Нейтронно-радиационный анализ. М.: Энергоатомиздат, 1984. 64 с.
3. Бете Г.А. Физика ядра. Ч. II. М.—Л.: ОГИЗ, 1948. 382 с.
4. McLane V., Dunford C., Rose P. Neutron Cross Sections, v. 2. Neutron Cross Section Curves. Academic Press, Inc. (London) LTD, 1988. 806 p.

Поступила в Редакцию 14.11.2000