

тате при $\rho_2 \gg \rho_1$ число Бонда зависит только от плотности расплава ρ_2 , что допускает некоторый произвол при задании свойств охладителя около поверхности раздела. Отдельные же капли расплава в силу конечности скорости их движения в охладителе и времени его вскипания обтекаются жидкостью. Подобной же точки зрения, ссылаясь на эксперименты, придерживаются авторы работы [6]. Наличие взаимодействия топлива с жидким охладителем также подтверждается и мелким его диспергированием как в экспериментах, моделирующих аварию RIA ([10], с. IV-4), так и в случае аварии на Чернобыльской АЭС (там же, с. IV-17). Таким образом, предположение об отсутствии паровой пленки на поверхности движущейся капли расплавленного топлива представляется справедливым.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Tsuruta T., Ochiai M., Saito Sh. Fuel fragmentation and mechanical energy conversion ratio at rapid deposition of high energy in LWR fuels. — Nucl. Sci. Techn., 1985, v. 22(9), p. 742—754.
2. Burns R. III, Scott J. Statistical analysis of 7 TREAT experiments. — Trans. ANS, 1978, v. 30, p. 463.
3. Нигматуллин Р.И. Динамика многофазных сред. М.: Наука, 1987.
4. Кучеренко Ю.А., Томашев Г.Г., Шибарилов Л.И. Экспериментальное исследование гравитационного турбулентного перемешивания в автомодельном режиме. — Вопросы атомной науки и техники. Сер. Теоретическая и прикладная физика, 1988, вып. 1, с. 13.
5. Plesset M., Whipple C. Viscous effects in Rayleigh-Taylor instability. — Phys. Fluids, 1974, v. 17, № 1, p. 1—7.
6. Young M., Berman M., Pong L. Hydrogen generation during fuel/coolant interactions. — Nucl. Sci. Engng, 1988, v. 98, p. 1—15.
7. Аманбаев Т.Р., Ивандаев А.И. Структура ударных волн в двухфазных смесях газа с каплями жидкости. — Журн. прикл. мех. и техн. физики, 1988, № 2, с. 99—107.
8. Zverev A.A. Interfacial Instability and Dynamical Scattering of Cylindric Volume of Liquid: Preprint IAE—5476/1, 1992.
9. Аксенов Р.М., Зверев А.А., Коваленко О.В., Сироткин В.К. Динамическое разрушение твэла и диспергирование топлива при неконтролируемом введении положительной реактивности: Препринт ИАЭ — 5442/5, 1991.
10. Chernobyl: where do we go from here? Proceedings of the Conference-by-Computer. Sponsored by McGraw-Hill's Nuclear Publications, Sept. 29 — Oct. 17, 1986.

Поступила в Редакцию 18.12.92

УДК 539.1.074

СЦИНТИЛЛЯЦИОННЫЕ ДЕТЕКТОРЫ НА ОСНОВЕ МОНОКРИСТАЛЛОВ CaF_2 — Eu

*Шульгин Б.В., Бузмакова С.И., Викторов Л.В., Крымов А.Л., Петров В.Л.,
Подуровский С.В. (Уральский политехнический ин-т), Козлов А.А.,
Шапиро Б.М., Шром М.Ю. (Ангарский электролизный химический комбинат),
Непомнящих А.И., Фигура П.В. (Ин-т геохимии СО Российской академии наук),
Лахов В.М. (Росстандарт)*

Кристаллы CaF_2 —Eu ($\rho = 3,19 \text{ г/см}^3$, $T_{\text{пл}} = 1407^\circ\text{C}$, $n = 1,44$, твердость по Моосу 4) относятся к классу перспективных сцинтилляционных материалов для регистрации рентгеновского излучения, а также избирательной дозиметрии и спектрометрии β -излучения на фоне γ -излучения или нейтронов [1—4]. Будучи изготовленными в виде тонких пластин $h < 4$ —5 мм, они имеют низкую чувствительность к фоновому излучению. Эффективность регистрации β -излучения сохраняется высокой, тем более что потери на обратное рассеяние незначительны вследствие низкого эффективного атомного номера CaF_2 —Eu ($Z_{\text{эф}} = 16,5$). Известные и наиболее широко применяемые в сцинтилляционной технике кристаллы NaI—Tl, CsI—Tl, BaF_2 , CaWO_4 и $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ ($Z_{\text{эф}}$ равен 50, 54, 51,1, 61 и 74 соответственно) характеризуются большими потерями на обратное рассеяние β -излучения и высокой чувствительностью к γ -излучению, они мало пригодны для избирательной регистрации β -излучения.

Кристаллы $\text{CaF}_2\text{—Eu}$ имеют преимущества перед CaF_2 [3]: они обладают в 1,2 раза более высоким световыходом и меньшей длительностью сцинтилляций (800 и 940 нс соответственно), максимум спектра свечения $\text{CaF}_2\text{—Eu}$ 430 нм лучше согласуется со спектральными характеристиками наиболее распространенных ФЭУ. Это и обусловило выбор кристаллов $\text{CaF}_2\text{—Eu}$ в качестве сцинтилляционных детекторов для регистрации рентгеновского и β -излучения.

В связи с подготовкой к выпуску промышленных партий сцинтилляционных детекторов $\text{CaF}_2\text{—Eu}$ на Ангарском электролизном химическом комбинате (АЭХК) возникла необходимость проведения более полных, чем ранее известные, исследований их сцинтилляционных свойств, а также создания средств метрологического обеспечения производства этих детекторов. Важными элементами упомянутых средств метрологического обеспечения являются государственные стандартные образцы светового выхода сцинтилляционных детекторов. Такие образцы на основе монокристаллов $\text{CaF}_2\text{—Eu}$ были разработаны и созданы совместными усилиями Уральского политехнического института и АЭХК при участии ВНИИ метрологии стандартных образцов (ВНИИМСО). В настоящей статье описываются результаты фундаментальных и прикладных исследований сцинтилляционных детекторов на основе $\text{CaF}_2\text{—Eu}$.

Образцы. Конструкция сцинтилляционных детекторов. Кристаллы $\text{CaF}_2\text{—Eu}$ (содержание EuF_3 0,01 — 2 % по массе) были выращены в графитовых тиглях методом Стокбаргера в вакууме. Для удаления следов кислорода в шихту добавляли фторид свинца в количестве 1 % по массе. Для сцинтилляционных детекторов использовали кристаллы диаметром 40 и толщиной 5 мм, их конструкцию (размер кристалла, тип и конструкцию отражателя) оптимизировали методом Монте-Карло [5]. Разработаны и изготовлены два варианта конструкции: рентгеновский детектор СД-Х и бета-детектор СД-В. В СД-Х использовали белую эмаль ВЛ-548 в качестве первичного диффузно отражающего слоя. В эмаль вводили порошок из сырого фторопласта в соотношении 1 : 1. Это позволяло просто и быстро создавать слои отражателя необходимой толщины (до 1,5 мм). Указанный состав отражателя характеризуется высокими отражающими свойствами ($K_{\text{отр}} = 0,9$). Кристалл с отражателем размещали в дюралюминиевом корпусе, размеры которого выбирали в соответствии с ГОСТ 27841-88. Входное окно закрывали тонким дюралюминиевым диском (толщиной 0,15 мм). В СД-В применяли зеркальный отражатель, изготавливаемый вакуумным напылением слоя алюминия толщиной 20 мкм. Боковую поверхность кристалла покрывали диффузно отражающей краской ВЛ-548 и фторопластовой лентой ФУМ. Негигроскопичность и высокая прочность кристаллов CaF_2 обеспечили простоту и дешевизну технологии "упаковки" детектора.

Методы измерений и аппаратура. Параметры сцинтилляционных детекторов, приводимые в справочной и технической литературе, целесообразно разделять на две группы: физические и технические. Первая группа параметров определяется свойствами самого кристалла-сцинтиллятора, вторая зависит и от конструкции (размера кристалла, его формы, типа отражателей и т.п.). Технические параметры (такие, как световой выход и энергетическое разрешение) измеряют только для упакованных образцов.

Спектрально-кинетические измерения проводили с помощью управляемой компьютером автоматизированной установки [6,7]. Форму кривых затухания сцинтилляций в наносекундном диапазоне измеряли с помощью однофотонного флюориметра [8,9]. Длительное послесвечение в диапазоне > 10 мкс изучали на многоканальном анализаторе формы световых сигналов МАФС [7,10], абсолютный энергетический выход сцинтилляций — по одноэлектронному уровню [11]. Методики измерения технических параметров (световыхода и энергетического разрешения) регламентированы стандартами [12,13]. (Они предписывают применение ^{137}Cs при аттестации по световому выходу). Технические параметры сцинтилляционных детекторов измеряли с помощью образцового комплекса для аттестации сцинтилляционных параметров, созданного в Уральском политехническом институте. Температурные зависимости световыхода и энергетического разрешения определяли путем помещения блока детектирования в

камеру тепла-холода, снабженную терморегулятором. Блок детектирования подключали к тому же образцовому комплексу для аттестации сцинтилляционных параметров.

Результаты измерения. Характеристики монокристаллов $\text{CaF}_2\text{—Eu}$ и детекторов на их основе следующие:

Абсолютный энергетический выход сцинтилляций:	
%	$8,4 \pm 1$
фотон/МэВ	$29 \cdot 10^3$
Длина волны максимума спектра излучения	
при 20 °С, нм	433 ± 5
Постоянная времени затухания сцинтилляций	
при 20 °С, нс	800 ± 80
Послесвечение, %, измеренное с задержкой, мс:	
1	$0,6 \cdot 10^{-6}$
10	10^{-7}
30	$< 10^{-9}$
Коэффициент поглощения на длине волны	
излучения (эффективный), см^{-1}	$0,3 \pm 0,05$
Световой выход сцинтилляций при возбуждении от ^{137}Cs при 20 °С, УЕСВ:	
ГСО № 3—1—92	2,5
№ 3—2—92	2,2
№ 3—3—92	2,2
Энергетическое разрешение при 20 °С, %:	
по линии ^{137}Cs	9—10,5
>> 241Am	26—30

Установлено следующее.

1. Оптимальная концентрация примеси, обеспечивающая получение наибольшего выхода сцинтилляций, оказалась равной 0,5 — 0,7% по массе. (Сцинтилляционные характеристики, обсуждаемые ниже, приведены для кристаллов с оптимальной концентрацией примеси при γ -возбуждении, если специально не оговорено). Из монокристаллов с концентрацией активатора 0,5—0,7% по массе изготовлены стандартные образцы.

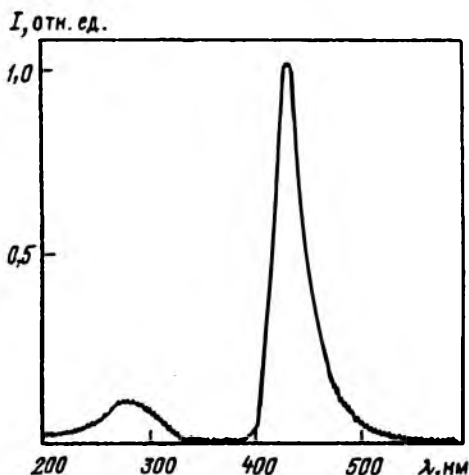
2. Абсолютный энергетический выход сцинтилляций для кристаллов $\text{CaF}_2\text{—Eu}$ оказался равным 8,4% (или $29 \cdot 10^3$ фотон/МэВ), что составляет 50% относительно NaI—Tl .

3. Спектр основного свечения $\text{CaF}_2\text{—Eu}$ ($\lambda = 433$ нм, рис. 1) согласуется со спектральной чувствительностью фотокатодов многих ФЭУ.

Световой выход и энергетическое разрешение представлены для СД-Х с диффузным отражателем. Для СД-В световой выход уменьшается на 10—15%, энергетическое разрешение при этом соответственно ухудшается.

4. Влияние температуры на спектр свечения монокристаллов $\text{CaF}_2\text{—Eu}$ незначительно: в диапазоне от -100 до $+100$ °С положение максимума полосы излучения сдвигается не более чем на 5—7 нм, полуширина увеличивается с ростом температуры от 26 до 38 нм соответственно.

5. Форма кривой затухания сцинтилляций в $\text{CaF}_2\text{—Eu}$ в микросекундной области (быстрый компонент) описывается одной экспонентой с постоянной времени 800 ± 80 нс. Кристаллы $\text{CaF}_2\text{—Eu}$ характеризуются низким уровнем послесвечения — амплитуда инерционного компонента в $10^6\text{—}10^7$ раз меньше амплитуды быстрого компонента.



Р и с. 1. Спектр стационарной рентгенолюминесценции монокристалла $\text{CaF}_2\text{—Eu}$ при 295 К

6. Спектр энергии γ -излучения ^{137}Cs , измеренный с помощью кристалла $\text{CaF}_2\text{—Eu}$, из-за его невысокого эффективного атомного номера характеризуется резким превышением комптоновского участка над фотопиком (рис. 2, кривая 1). Для уменьшения погрешности определения параметров фотопика необходимо набирать большую статистику ценой огромных затрат времени — 20—30 мин на один спектр.

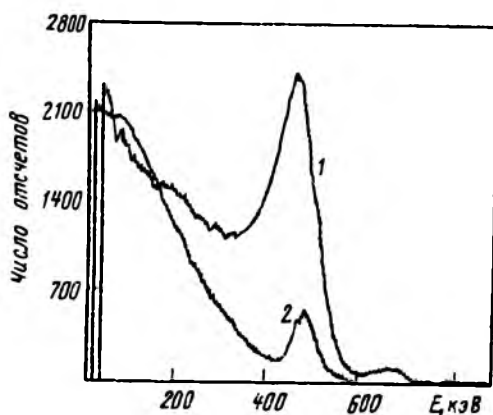
7. Для созданных детекторов характерно высокое энергетическое разрешение ($R = 9\text{—}10,5\%$ для γ -излучения ^{137}Cs). В измерениях ^{137}Cs использовался в качестве источника как γ -излучения (при установке алюминиевого фильтра), так и β -излучения со сплошным спектром и монолинией конверсионных электронов. На зарегистрированном с помощью СД-В спектре энергии β -излучения ^{137}Cs хорошо разрешается пик, обусловленный конверсионными электронами (рис. 2, кривая 2).

8. Зависимости светового выхода сцинтилляций (1) от температуры совпадают с температурными зависимостями импульсной катодолюминесценции, полученными на автоматизированной установке [6,7] (рис. 3, кривые 1, 3). Тепловое тушение радиолуминесценции и соответственно уменьшение светового выхода сцинтилляций начинается при $T > 20^\circ\text{C}$; температурный коэффициент светового выхода в этом диапазоне составляет $0,4\text{—}0,5\%/^\circ\text{C}$. Зависимость энергетического разрешения (кривая 2) от температуры удовлетворительно совпадает с теоретически предсказываемой; она изменяется пропорционально корню светового выхода сцинтилляций. Кривая зависимости постоянной времени затухания сцинтилляций от температуры совпадает с кривой 3, что соответствует закону теплового тушения люминесценции в $\text{CaF}_2\text{—Eu}$.

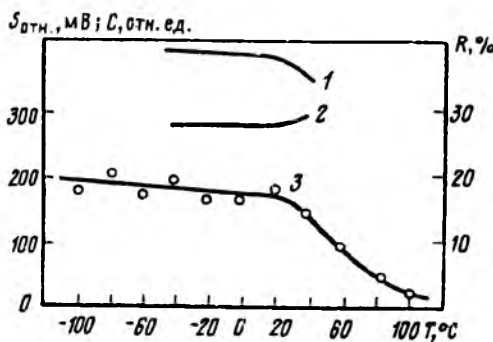
Интегральный выход импульсной катодолюминесценции 3 измерен при постоянной времени тракта регистрации 40 мкс, световой выход сцинтилляций 1 и энергетическое разрешение 2 — при возбуждении ^{241}Am на образцовом комплексе для аттестации сцинтилляционных параметров.

Анализ результатов исследований показывает, что полученные сцинтилляционные параметры для детекторов на основе монокристаллов $\text{CaF}_2\text{—Eu}$ не уступают таковым для известных зарубежных аналогов. Например, средний энергетический выход сцинтилляций для детекторов на основе монокристаллов $\text{CaF}_2\text{—Eu}$ фирмы Harshaw составляет 50% NaI—Tl , что характерно и для разработанных детекторов. Энергетическое разрешение по линии ^{137}Cs более высокое, оно достигает $9\text{—}10,5\%$ по сравнению с 11% реакторов фирмы Harshaw [4].

Стандартные образцы светового выхода сцинтилляционных детекторов на основе монокристаллов $\text{CaF}_2\text{—Eu}$. Разработанным, изготовленным и метрологически аттестованным государственным стандартным образцам присвоен номер 6538-92 по Госреестру от 15.12.92.



Р и с. 2. Спектр энергии γ - (1) и β -излучения (2) ^{137}Cs , зарегистрированный с помощью сцинтилляционных детекторов на основе монокристалла $\text{CaF}_2\text{—Eu}$, изготовленных в конструкции СД-Х (1) и СД-В (2). (Масштаб по шкале абсцисс для кривой 2 преднамеренно сжат для наглядности)



Р и с. 3. Температурные зависимости светового выхода (1, 3) и энергетического разрешения (2) монокристаллов $\text{CaF}_2\text{—Eu}$ и детекторов на их основе



Р и с. 4. Общий вид стандартного образца светового выхода сцинтилляционных детекторов на основе монокристаллов $\text{CaF}_2\text{—Eu}$

Образцы предназначены для передачи размера единицы светового выхода выпускаемым детекторам на основе $\text{CaF}_2\text{—Eu}$ с погрешностью аттестации не более 8%, что соответствует 3-му разряду (ниже для краткости будем обозначать их как ГСО-3) [13]. Изготовлены и аттестованы три экземпляра: 1-й — для АЭХК, 2-й — принадлежность УПИ, 3-й — хранится во ВНИИМСО (рис. 4). Аттестация образцов ГСО-3 проведена в УПИ на образцовом комплексе, прошедшем аттестацию во ВНИИМСО на государственном уровне. В состав комплекса входят блок детектирования БД-182 на основе фотоумножителя ФЭУ-182, аттестованного по спектральной чувствительности, многоканальный амплитудный анализатор импульсов в стандарте КАМАК, управляемый от ЭВМ IBM-PC/AT, источник γ -излучения ^{137}Cs и государственный стандартный образец 2-го разряда на основе монокристалла NaI—Ti , № 439-82П (ГСО-2).

Относительный световой выход ГСО-3 определяли путем сравнения амплитуды импульсов от аттестуемого ГСО-3 и эталонного ГСО-2 в соответствии со стандартной методикой [12, 13]. Результаты измерения световых выходов приведены (в условных единицах световых выходов УЕСВ [12]) для трех экземпляров аттестованных ГСО-3 с погрешностью 8% при доверительной вероятности 0,95. (Для ГСО-2 световой выход составлял $4,3 \text{ УЕСВ} \pm 6\%$).

В заключение авторы благодарят Н.Г. Семенко (ВНИИМСО) и В.Е. Соколова (АЭХК) за помощь в работе и обсуждение результатов.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Ставиский Ю.Я., Шопарь А.В. Сцинтилляционный счетчик с кристаллом CaF_2 . — Приборы и техника эксперимента, 1962, № 5, с. 177—178.
2. Рогожин А.А., Галунов Н.З., Грудская Л.Е., Шамовский Л.М. Исследование процессов возбуждения сцинтилляций в $\text{CaF}_2\text{—Eu}$. — В сб.: Закономерности распределения примесных центров в ионных кристаллах. М., ВИС, 1977, с. 40—49.
3. Виктор Л.В., Скориков В.М., Жухов В.М., Шульгин Б.В. Неорганические сцинтилляционные материалы. — Изв. АН СССР. Неорг. материалы, 1991, т. 27, № 10, с. 2005—2029.
4. Scintillation Detector Harshaw. Catalogue, 1982. 112 p.
5. Бузмакова С.И., Виктор Л.В., Волков А.Р. Расчет светособирания в сцинтилляционных детекторах методом Монте-Карло. Свердловск, Урал. политехн. ин-т., 1990. Деп. в ВИНТИ, 1990, № 1207. 14 с.
6. Виктор Л.В., Ковшов А.Н., Кружалов А.В. и др. Спектрально-кинетический метод исследования радиолуминесценции с временным разрешением. — В кн.: Радиационно-стимулированные явления в твердых телах. Межвуз. сборник. Свердловск, УПИ им. С.М. Кирова, 1984, с. 110—117.
7. Виктор Л.В., Волков А.Р., Ковшов А.Н. и др. Автоматизированная система для научных исследований радиационно-оптических свойств диэлектриков. — Там же, 1985, с. 109—117.
8. Виктор Л.В., Тюленев Л.Н. Однофотонный флуориметр для исследования сцинтилляций. — В кн.: Химия твердого тела. Свердловск, УПИ, 1980, вып. 4, с. 116—124.

9. Викторов Л.В., Кружалов А.В., Шульгин Б.В. Особенности корреляционного метода исследования слабых сцинтилляций. — Приборы и техника эксперимента, 1982, № 2, с. 171—174.
10. Викторов Л.В., Ковшов А.Н., Кружалов А.В., Скотников В.А. Многоканальный анализатор формы световых вспышек. — Изв. вузов. Приборостроение, 1984, № 7, с. 84 — 87.
11. Викторов Л.В., Волков А.Р., Кружалов А.В. и др. Абсолютная сцинтилляционная эффективность неорганических кристаллов. — Атомная энергия, 1991, т. 71, вып. 1, с. 28 — 31.
12. ГОСТ 17038.0-79—17038.7-79. Детекторы ионизирующих излучений сцинтилляционные. Методы измерений сцинтилляционных параметров.
13. ОСТБ-09-91-80. Локальная поверочная схема для средств измерений светового выхода сцинтилляционных детекторов ионизирующих излучений.

Поступила в Редакцию 3.03.93

УДК 539.172.4

ИЗОТОНИЧЕСКАЯ ЗАВИСИМОСТЬ СЕЧЕНИЙ РЕАКЦИИ (n, p) ОТ ПАРАМЕТРА НЕЙТРОННОГО ИЗБЫТКА ЯДРА

Трофимов Ю.Н. (Радиевый ин-т им. В.Г. Хлопина)

Изотопическая зависимость сечений реакции (n, p) и (n, α) при энергии 14,5 МэВ, выявленная в работах [1, 2], имеет вид

$$\ln G_i = a_i - b_i (N - Z)/A, \quad (1)$$

где G — сечение реакции (n, p) или (n, α) ; a_i, b_i — постоянные; N, Z — число нейтронов и протонов ядра с массовым числом A . Аналогичная зависимость была установлена для нейтронов той же энергии в реакциях (n, γ) [3] и (n, t) [4].

Соотношение (1) отражает хорошо известную экспериментальную зависимость: сечение реакций (n, p) , (n, α) , (n, γ) , (n, t) уменьшается с ростом массового числа изотопа.

В дальнейшем оказалось, что гораздо более широкий круг разнородных ядерных характеристик описывается изотонической зависимостью от параметра нейтронного избытка $(N - Z)/A$: сечение реакции (n, γ) при энергии нейтронов 0,5 — 2 МэВ [5], вероятность трех мод спонтанного полураспада тяжелых четно-четных ядер (α -эмиссия [6], деление ядра [7] и эмиссия тяжелых частиц [8]).

Изотоническая зависимость ядерных характеристик от параметра нейтронного избытка описывается тем же соотношением (1), но имеет достоинства, отличающие ее от изотопической зависимости:

ядерно-физические характеристики определяются по аналогичным характеристикам изотопов разных элементов. Это свойство изотонической систематики особенно полезно при оценке труднодоступных для измерения ядерных характеристик;

изотоническая систематика проявляет регулярную зависимость от Z ядер. Она более упорядочена и соответственно информативнее изотопической зависимости, которая в свою очередь полезна для демонстрации нерегулярностей, обусловленных четностью и магичностью чисел нейтронов.

Исходя из изложенного, при систематизации сечений реакции (n, p) предпочтительнее сопоставлять данные измерений ядер с одинаковым содержанием нейтронов.

Основная часть работ, посвященных измерению сечений реакции (n, p) , относится к интервалу энергии 14—15 МэВ. Компиляция по измеренным сечениям приводится в справочнике [9]. Эти данные для ядер с четным числом нейтронов ($N = 38—124$) использованы в настоящей работе для построения линейных изотонических зависимостей (1), на основе которых были оценены сечения реакции (n, p) ядер, труднодоступных для измерений.

На рисунке показан фрагмент обработки сечений реакции (n, p) с помощью изотонической зависимости от параметра нейтронного избытка. Эта зависимость передается семейством линий, каждая из которых соответствует ядрам с постоянным числом нейтронов. Параметр $(N - Z)/A$ хорошо описывает прямолинейность изменения логарифма сечения