

Определение кларковых концентраций урана в ионных кристаллах

И. Г. БЕРЗИНА, И. Б. БЕРМАН, М. Ю. ГУРВИЧ

УДК 539.173.4

Принципиальная возможность определения практически сколь угодно малых (кларковых) концентраций урана в кристаллах [1] основана на том, что осколки ядра искусственно расщепленного урана оставляют в кристалле трек-дефектную область [2], которую можно обнаружить с помощью агрессивного травителя [3]. При этом трудно однозначно идентифицировать соответствующую фигуру травления, появляющуюся на претравленной поверхности наряду с множеством других подобных фигур травления, которые, однако, обусловлены не треками, а дефектами иного типа, например дислокациями. Вопрос об идентификации треков в ионных кристаллах рассматривался в работе [4]. Здесь излагаются результаты определений кларковых концентраций урана, при проведении которых использовались описанные ранее приемы.

В ходе эксперимента поверхность естественного скола изучавшихся кристаллов подвергалась нейтронной бомбардировке, чтобы вызвать искусственное деление ядер урана. Перед облучением кристаллы претравливались в соответствующих травителях.

Концентрация примеси урана определялась по формуле

Кристалл	NaCl * (естеств.)	NaCl (искусств.)	KCl (искусств.)	CaCO ₃ * (мелко- зернист.)	CaCO ₃ (крупно- зернист.)	LiF
<i>C, am/am</i>	$5,2 \cdot 10^{-9}$	$4,4 \cdot 10^{-10}$	$6,1 \cdot 10^{-10}$	$1,5 \cdot 10^{-6}$	$3,8 \cdot 10^{-10}$	$1,3 \cdot 10^{-9}$

$$C = \frac{2\rho\mu}{N_0 J n \sigma k d R e},$$

где ρ — плотность следов от осколков деления, возникающих в кристалле в результате облучения последнего тепловыми нейтронами в ядерном реакторе; μ — молекулярный вес исследуемого вещества; N_0 — число Авогадро; J — изотопическая доля U²³⁵ в кристалле; n — интегральный поток тепловых нейтронов; σ — эффективное сечение деления U²³⁵ тепловыми нейтронами; k — число атомов в молекуле вещества; d — удельный вес вещества; R — эффективный выявляемый след осколка деления в материале; e — эффективность выявления следов от осколков деления.

Общая интегральная доза, полученная образцами по тепловым нейтронам, составляла 10^{15} нейтр./см². Воздействие быстрых нейтронов учитывалось после облучения образцов в реакторе в кадмииевом контейнере по плотности следов от вынужденного деления U²³⁸, при этом было установлено, что вкладом от деления U²³⁸ быстрыми нейтронами в общую плотность следов от осколков деления можно пренебречь.

Значение e зависит от величины солированного слоя кристалла в процессе травления, так как следы, лежащие под малыми углами к поверхности кристалла, при травлении исчезают [5]. Определение e проводилось при облучении кристаллов коллимированным пучком осколков деления Cm²⁴⁴, направленным под различными углами к поверхности кристалла. Для исследованных кристаллов (при выбранных условиях

травления) значение e для NaCl, KCl, LiF и CaCO₃ соответственно равно примерно 60; 50; 65 и 70%.

В том случае, когда плотность дислокаций в кристаллах превышала 10^6 см⁻², для определения концентрации урана к исследуемой поверхности кристалла на время облучения прикладывался специальный детектор, который регистрировал все акты вынужденного деления, происходящего в приповерхностном слое кристалла. В качестве такого детектора использовался лавсан *, концентрация урана в котором по условиям изготовления практически равна нулю. Расчет плотности следов от осколков деления на лавсане основан на следующем. В процессе облучения в реакторе вылетающие из приповерхностного слоя образца осколки деления попадают на прилегающий к кристаллу лавсан и создают в нем нарушения, которые выявляются впоследствии специальным химическим травителем (40%-ный раствор KOH в воде при 60° С). Концентрация урана определялась по приведенной формуле с учетом величины e , для лавсана равной 76%.

С помощью вышеизложенных методик были впервые определены концентрации урана в указанных кристаллах. Ниже приведены результаты определений:

Звездочкой обозначены величины, полученные при регистрации следов от осколков деления на лавсане; остальные значения концентраций получены по подсчету плотности следов от осколков деления непосредственно на поверхностях кристаллов при помощи техники двойного травления [4] и при регистрации следов от осколков деления на лавсане.

Ошибка в определении концентрации урана при помощи описанных методов складывается из ошибки, допускаемой при подсчете плотности следов от осколков деления, ошибок определения потока нейтронов и эффективности выявления следов от осколков деления в целом не превышает 50%. Надежная чувствительность метода составляет 10^{-11} am/am при интегральной дозе тепловых нейтронов 10^{16} нейтр./см².

Таким образом, возможность регистрации следов от осколков деления в ионных кристаллах позволяет определить в них концентрацию урана с такой чувствительностью, которая в настоящее время не доступна ни одному из существующих методов.

Поступило в Редакцию 13/VII 1966 г.

ЛИТЕРАТУРА

1. R. Price, R. Walker. Appl. Phys. Letters, 2, 23 (1963).

* Принципиальная возможность регистрации следов от осколков деления в полимерных материалах показана, например, в работах [6, 7].

2. E. Silk, R. Barnes. Philos. Mag., 4, 970 (1959).
 3. P. Price, R. Walker. J. Appl. Phys., 33, 3407 (1962).
 4. И. Г. Берзина, И. Берман. «Докл. АН СССР», 174, №3 (1967).
 5. А. Капусцик, В. П. Перелыгин, С. П. Третьякова. «Приборы и техника эксперимента», 5, 72 (1964).
 6. R. Fleischer et al. Phys. Rev., 133, 1443 (1964).
 7. R. Fleischer, P. Price, R. Walker. Science, 149, 383 (1965).

Границы использования Co^{60} и Cs^{137} при дискретном контроле уровней

и. н. плаксин, м. л. гольдин

В настоящее время для большинства технических задач Co^{60} и Cs^{137} — наиболее применимые радиоактивные изотопы при дискретном контроле уровней. Принято [1, 2], что время работы источника излучения до перезарядки должно составлять 10–15 лет; минимальный срок — два года. Экономическая эффективность многолетней службы радиоактивных изотопов доказана [1].

Определим границы использования Co^{60} и Cs^{137} для равных условий контроля, под которыми будем понимать постоянство расстояния между излучателем и детектором одного и того же типа и одинаковой площади, а также постоянную толщину поглотителя (например, стекок бункера). Кроме того, примем, что контролируемый материал обеспечивает такую кратность ослабления потока излучения, при которой γ -реле будет устойчиво срабатывать (отпускать), а детектор зарегистрировать одно и то же количество γ -квантов Co^{60} или Cs^{137} .

Показано, что источники излучения при контроле уровней можно выбрать на основе следующих критериев радиоактивности:

$$K'_p = \frac{2^{t/T}}{q} \exp(\mu d); \quad (1)$$

$$K'_{pb} = \frac{2^{t/T_m}}{q}. \quad (2)$$

Здесь t — время до замены источника; T — период полураспада; m — γ -эквивалент изотопа (без начального фильтра); q — число γ -квантов на один распад; μ — линейный коэффициент поглощения материала поглотителя; d — толщина поглотителя. Выражение (2) применимо, когда отсутствует постоянный поглотитель, т. е. излучение между источником и приемником ослабляется настолько незначительно, например в воздухе, что этим ослаблением можно пренебречь (индекс b при K_p).

Известно, что для решения большинства технических задач при дискретном контроле уровней лучшим детектором γ -квантов пока что является галогенный счетчик Гейгера — Мюллера, эффективность которого составляет 0,83% для Co^{60} и 0,47% для Cs^{137} [3]. В связи с этим соотношения (1) и (2) должны учитывать значение ε . Кроме того, следует учитывать и фактор накопления B . Известны факторы накопления энергии B_B и дозы B_D [4]. Первый представляет собой отношение потока энергии, переносимого всеми квантами, к энергетическому потоку, созданному первичными квантами. Этот фактор должен учитываться для детекторов излучения, регистрирующих кванты независимо от величины их энергии (счетчики Гейгера — Мюллера). Для

другого типа детекторов, например ионизационной камеры, необходимо учитывать B_D .

Изложенное позволяет представить критерии (1) и (2) в виде

$$K_p = \frac{2^{t/T_m}}{qeB_B} \exp(\mu d); \quad (3)$$

$$K_{pb} = \frac{2^{t/T_m}}{qe}. \quad (4)$$

Определим границы применения Co^{60} и Cs^{137} для поглотителя из железа по соотношению

$$\eta = \frac{K_p \text{ Co}^{60}}{K_p \text{ Cs}^{137}} \quad (5)$$

для $t = 15$ лет и $t = 2$ года. Интересно также определить указанные границы на основе коэффициента

$$\eta' = \frac{K'_p \text{ Co}^{60}}{K'_p \text{ Cs}^{137}}. \quad (6)$$

Соответствующие расчеты приведены в табл. 1, 2 и 3, по которым построены графики, представленные на рисунке.

Значения K'_p для Co^{60} и Cs^{137}
и коэффициента η' при наличии
поглотителя из железа ($t = 15$ лет)

Таблица 1

Толщина поглотителя, см	K'_p		η'
	Co^{60}	Cs^{137}	
1	8,7	1,1	8,1
2	13,2	1,9	7,0
3	20,1	3,4	5,9
4	30,6	6,1	5,0
5	46,5	10,9	4,3
6	70,2	19,2	3,7
7	98,0	34,0	2,9
8	164,0	61,0	2,7
9	250,0	109,0	2,3
10	380,0	194,0	2,0
11	586,0	346,0	1,7
12	889,0	617,0	1,44
13	1341	1089	1,23
14	2040	1940	1,05