

ЛИТЕРАТУРА

1. П. И. Христенко и др. «Труды Второй Международной конференции по мирному использованию атомной энергии (Женева, 1958)». Доклады советских ученых. Т. 3. М., Атомиздат, 1959, стр. 655.
2. Е. А. Коробейников. «Атомная энергия», 23, 479 (1967).
3. С. Н. Пейн, Д. Г. Киттел. В кн. «Металлургия ядерной энергетики и действие облучения на материалы». Материалы Международной конференции по мирному использованию атомной энергии. М., Metallurgizdat, 1956, стр. 642.
4. R. Hueshen, R. Nempert, N. Kelly. Proc. Nucl. Eng. Conference. Vol. 2, 1957, p. 163.
5. O. Shaw. Nucl. Engng, 5, 214 (1960).
6. Я. Б. Фридман. Механические свойства металлов. М., Оборонгиз, 1952.
7. С. Т. Конобеевский, Н. Ф. Правдюк, В. И. Кутайцев. В кн. «Ядерная химия и действие облучения». Материалы Международной конференции по мирному использованию атомной энергии (Женева, 1955). М., Госхимиздат, 1958, стр. 526.
8. А. С. Займовский и др. В кн. «Труды Второй международной конференции по мирному использованию атомной энергии (Женева, 1958)». Доклады советских ученых. Т. 3. М., Атомиздат, 1959, стр. 573.
9. П. Ф. Бутра, И. А. Коробейников. «Атомная энергия», 19, 372 (1965).
10. С. Т. Конобеевский. Действие облучения на материалы. М., Атомиздат, 1967.
11. R. Bellamy. Radiation damage in reactor materials. Vienna, IAEA, 1963, p. 59.

Исследование метода анализа делящихся веществ в растворах с помощью подсветки нейтронами

В. К. БОГАТЫРЕВ, Б. Г. ДУБОВСКИЙ, В. В. ФРОЛОВ

УДК 539.173.84

В связи с быстрым развитием технологии переработки ядерного горючего продолжают совершенствоваться и вновь разрабатываться различные методы ядернофизического контроля концентрации делящихся веществ. К приборам такого типа предъявляются весьма сложные требования, например бесконтактность, дистанционность и непрерывность анализа в условиях, когда датчик-концентрамер работает в присутствии высокой γ -активности и нейтронного фона спонтанно делящихся изотопов и фона (α, n)-реакций. Эти особенности ограничивают чувствительность одних методов и делают невозможным применение других (основанных на γ -спектрометрии).

В настоящей работе изложены экспериментальные данные по измерению концентрации U^{235} с помощью подсветки раствора нейтронами от Sb — Be-источника и регистрации быстрых нейтронов деления. В работе [1] предлагается использовать подсветку нейтронами от Sb — Be-источника для анализа выгорания урана в твэле, причем для регистрации нейтронов деления была выбрана ториевая камера. Практически данный метод измерения количества U^{235} является бесфоновым, так как ториевая камера не чувствительна к нейтронам Sb — Be-источника и γ -излучению. Однако для измерений малых концентраций U^{235} (~ 10 мг/л) при разумной интенсивности источника Sb^{124} эффективность ториевой камеры недостаточна.

В качестве детектора в настоящей работе использовались детекторы на основе BF_3 и He^3 ,

окруженные слоем парафина и кадмием. При размещении такого детектора в водном растворе на некотором расстоянии от источника скорость счета фоновых нейтронов резко падает, в то время как высокая чувствительность регистрации быстрых нейтронов деления сохраняется.

Выбор источника нейтронов подсветки. Источник подсветки должен давать наибольшую плотность тепловых нейтронов при наименьшей длине релаксации нейтронов с первоначальной энергией в воде. Желательно, чтобы излучение раствора не влияло на выход нейтронов источника.

Согласно многогрупповой теории, в случае если длина релаксации $L > \sqrt{\tau_{\text{тепл}}}$ (τ — возраст тепловых нейтронов), то отношение потока тепловых нейтронов к надтепловому возрастает при удалении от источника, что соответствует условию быстрого замедления. В работе [2] приведены характеристики некоторых источников, длины релаксации нейтронов в воде в зависимости от энергии E_0 и возраст $\tau_{\text{тепл}}$ для воды как функция энергии нейтронов источника. При $L = 2,78$ см для воды соотношению $\sqrt{\tau_{\text{тепл}}} < L$ удовлетворяют нейтроны источника с энергией $E_0 < 300$ кэв. Минимальное значение $\tau_{\text{тепл}}$ соответствует максимальной плотности тепловых нейтронов. Если $E_0 > 500$ кэв, то пространственное распределение определяется быстрой группой нейтронов и удаление детектора от источника не дает заметной дискриминации фоновых отсчетов при регистрации нейтронов деления.

Из доступных источников с $E_0 < 300$ кэв известны следующие: $Y^{88}(\gamma, n)Be^9$ ($E_0 = 170$ кэв), $Th^{228}(\gamma, n)D_2O$ ($E_0 = 200$ кэв), $Sb(\gamma, n)Be$ ($E_0 = 24$ кэв). Перспективны для метода подсветки также источники, средняя энергия нейтронов которых лежит еще в промежуточной области: $Ra^{226}(\gamma, n)Be$ ($E_0 = 500$ кэв) и $Po^{210}(\alpha, n)Li^7$ ($E_0 = 400$ кэв).

Экспериментальная установка. Измерение концентрации U^{235} проводилось в баке с водой размером $60 \times 60 \times 60$ см, в котором располагался внутренний бак размером $25 \times 25 \times 60$ см с раствором U^{235} . В центре внутреннего бака размещался $Sb - Be$ -источник активностью ~ 100 мкюри, что при толщине бериллия 2 см соответствовало $\approx 2 \cdot 10^6$ нейтр.сек $^{-1}$, при этом поток тепловых нейтронов вблизи источника составлял $\sim 10^5$ нейтр.см $^{-2}$.сек $^{-1}$. В качестве детектора были выбраны счетчики СММ-18, наполненные He^3 , и счетчики СММО-5 с наполнением BF_3 . Коронные счетчики СММ-18 работали в пропорциональном режиме при рабочем напряжении 1100 в с целью снижения влияния γ -фона источника на эффективность регистрации нейтронов, так как в коронном режиме при изменении γ -поля сильно меняется коэффициент газового усиления [3]. Кроме того, важно уменьшить длительность ионизационного импульса от нейтрона на выходе усилителя, чтобы исключить $\gamma - \gamma$ -наложения. С этой целью в усилителе УШ-2 включалась дифференцирующая цепочка с постоянной времени 0,16 мксек.

В работе использовались U^{235} 90%-ного обогащения в виде раствора уранилнитрата и эталон, представлявший собой тонкую фольгу площадью 2×4 см и весом 1570 мг.

Экспериментальные результаты и их обсуждение. На рис. 1 представлены кривые ослабления нейтронов в воде от $Sb - Be$ -источника (кривые 2 и 3), $Sb - Be$ -источника с урановым эталоном, расположенным вплотную к бериллию (кривые 4 и 5), и от источников Cf^{252} (кривая 6) и $Ce^{144} - Be$ (кривая 1).

Детектор тепловых нейтронов (счетчик СММ-18) окружен слоем воды толщиной 2,4 см и закрыт кадмием. Активность источников Sb^{124} составляла 10 и 350 мкюри, что позволяло проводить измерения при различной толщине слоя воды с достаточно высокой статистикой отсчетов. Кривая 3 измерена детектором тепловых нейтронов, поэтому ее наклон определяется длиной диффузии $L = 2,77$ см. Кривая 2 измерена тем же детектором, который, однако, окружен замедлителем и кадмием. Наклон этой кривой круче и определяется длиной

релаксации в воде нейтронов с энергией $E_n = 24$ кэв. На расстояниях примерно 25—30 см наклон кривой 2 становится более пологим и равным наклону кривой 1 вследствие вклада нейтронов ($E_n = 360$ кэв), присутствующих в исходном спектре нейтронов $Sb - Be$ -источника в количестве $\sim 4\%$.

Наклон кривой ослабления в воде нейтронов спектра деления определяется длиной релаксации, равной $\sim 9,5$ см, и не зависит от экранирования детектора кадмием и замедлителем.

Отношение числа отсчетов детектора от нейтронов деления в эталоне $N_{эфф}$ к числу отсчетов от нейтронов источника $N_{фон}$ при экранировании детектора замедлителем и кадмием (кривые 2 и 5 на рис. 1) возрастает с расстоянием значительно быстрее, чем без экранирования (кривые 3 и 4).

Для выбора толщины замедлителя H между кадмием и стенкой счетчика провели следующий эксперимент. Источники $Sb - Be$, потом Cf^{252} фиксировали на расстоянии 18 см от детектора, затем измеряли скорость счета при увеличении толщины замедляющего слоя воды H от 0 до 8 см.

На рис. 2, а приведены кривые (1, 2) относительного возрастания величин ϵ_f и ϵ_i , пропорциональных эффективностям детектора к нейтронам деления и источника $Sb - Be$, а на рис. 2, б кривая 3 — отношение этих величин для разных H , которое достигает максимума при $H \approx 1,5$ см.

Однако выбор толщины замедлителя H следует подчинить одновременно критерию минимальности статистической ошибки, т. е. максимальной чувствительности при количественном анализе U^{235} . Обозначим через N суммарное число отсчетов от нейтронов $Sb - Be$ -источника и нейтронов при делении ядер U^{235} в эталоне. Можно записать для N следующее выражение:

$$N = IK_f \epsilon_f C + IK_i \epsilon_i, \quad (1)$$

где C — количество U^{235} в растворе или осадке; K — коэффициент пропорциональности; I — мощность источника.

За предельную чувствительность примем такое измерение, при котором эффект равен фону ($\frac{\Delta C}{C} = 100\%$). Исходя из этого, запишем

$$\sqrt{N} = N \quad (2)$$

и

$$\sqrt{IK_i \epsilon_i + IK_f \epsilon_f C_{\min}} = IK_f C_{\min} \epsilon_f. \quad (3)$$

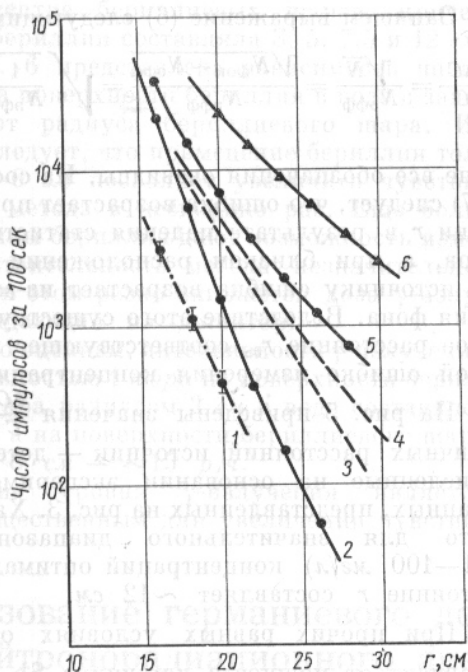


Рис. 1. Ослабление нейтронов в воде, измеренное счетчиком СММ-18: 1, 2, 5, 6 — закрытым кадмием; 3, 4 — незакрытым кадмием (r — расстояние между центрами фотонейтронного источника и счетчика СММ-18).

Решая уравнение относительно $C_{\text{мин}}$ и принимая $\frac{1}{I} \ll \frac{1}{\sqrt{I}}$, получим сравнительно точную оценку:

$$C_{\text{мин}} \sim \frac{1}{\sqrt{I}} \frac{\sqrt{\epsilon_i(H)}}{\epsilon_f(H)} \quad (4)$$

График данной зависимости приведен на рис. 3, из которого видно, что наилучшая чувствительность достигается при $H \approx 4$ см.

На рис. 4 даны кривые ослабления нейтронов в воде, измеренные батареями из четырех счетчиков СММ-5, экранированных 25 см воды и кадмием, при следующих концентрациях U^{235} в растворе (в мг/л): 2—32,5; 3—97,7; 4—293 и 5—875 (1 — чистая вода). При концентрации 875 мг/л скорость счета в 200 раз превышает фоновую скорость от источника Sb — Ве. Линейность показаний интенсивметра соблюдается при измерениях малых концентраций вплоть до $\sim 5,0$ г/л.

Концентрация U^{235} вычисляется из соотношения

$$C = C_{\text{эталон}} \frac{N - N_{\text{фон}}}{N_{\text{эталон}} - N_{\text{фон}}} \quad (5)$$

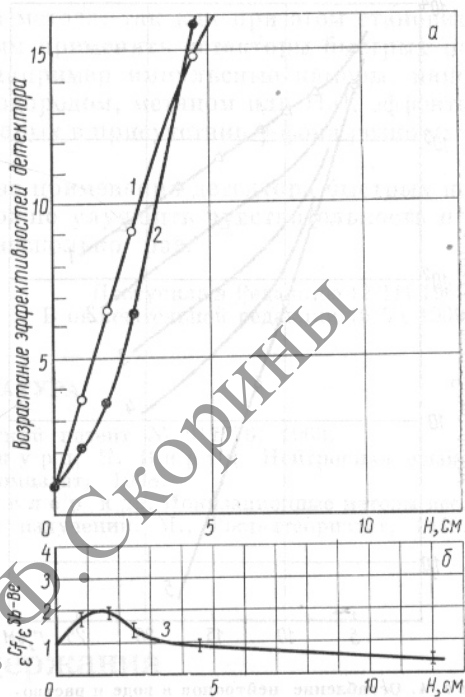


Рис. 2. Относительное возрастание эффективности регистрации нейтронов от источников Cf^{252} (кривая 1) и Sb — Ве (кривая 2) в зависимости от толщины замедлителя между кадмием и стенкой счетчика.

При этом ошибка измерения имеет вид

$$\frac{\Delta C}{C} = \frac{\sqrt{N}}{N - N_{\text{фон}}} \quad (6)$$

так как при неизменном расстоянии источник — детектор и градуировке установки можно посредством многократных измерений точно измерить $N_{\text{фон}}$ и $N_{\text{эталон}}$.

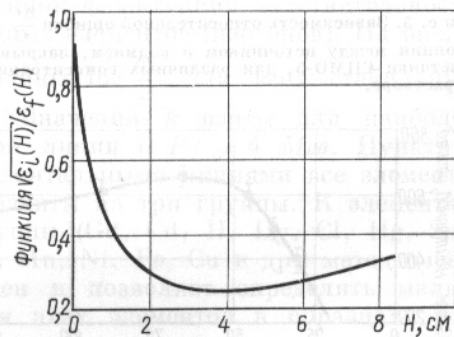
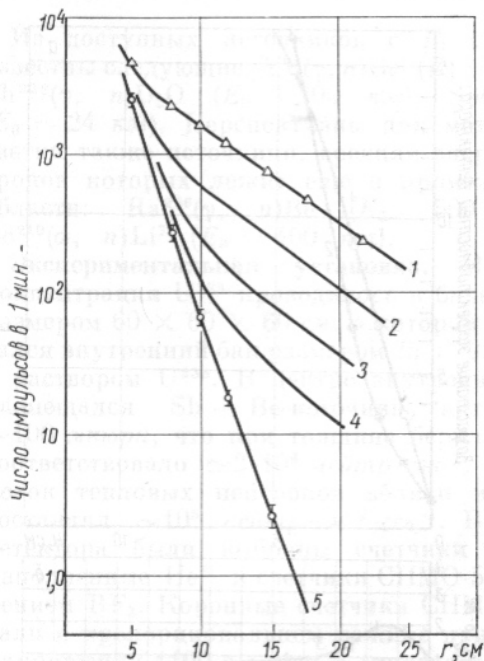
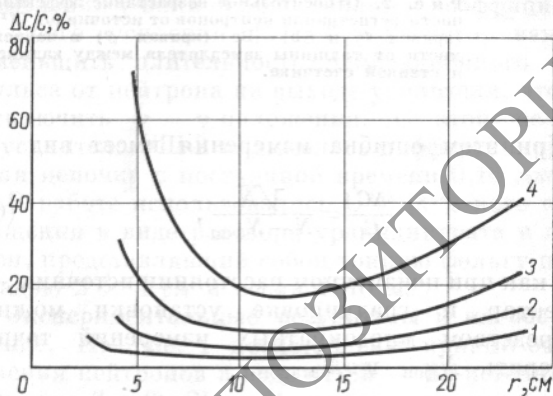


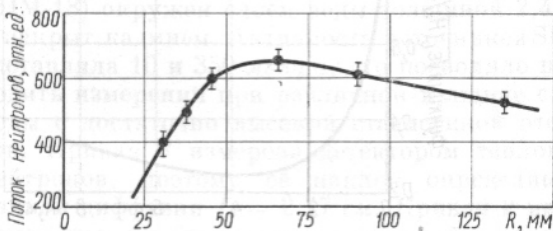
Рис. 3. Зависимость чувствительности определения урана от толщины замедляющего слоя счетчика H .



Р и с. 4. Ослабление нейтронов в воде и растворах U^{235} .



Р и с. 5. Зависимость относительной ошибки $\frac{\Delta C}{C}$ от расстояния между источником и кадмием, закрывающим счетчик СММО-5, для различных концентраций U^{235} в растворе.



Р и с. 6. Зависимость числа делений на поверхности $Sb-Be$ -источника в воде от радиуса бериллиевого шара.

Запишем выражение (6) следующим образом:

$$\frac{\Delta C}{C} = \frac{\sqrt{N}}{N_{эфф}} = \frac{\sqrt{N_{фон} + N_{эфф}}}{N_{эфф}} = \sqrt{\frac{1}{N_{эфф}} + \frac{N_{фон}}{N_{эфф}^2}}, \quad (7)$$

где все обозначения очевидны. Из соотношения (7) следует, что ошибка возрастает при увеличении r в результате падения статистики отсчетов, а при близком расположении детектора к источнику ошибка возрастает из-за увеличения фона. Вследствие этого существует некоторое расстояние r_0 , соответствующее минимальной ошибке измерения концентраций.

На рис. 5 приведены значения $\frac{\Delta C}{C}$ для различных расстояний источник — детектор, вычисленные на основании экспериментальных данных, представленных на рис. 3. Характерно, что для значительного диапазона малых (1—100 мг/л) концентраций оптимальное расстояние r составляет ~ 12 см.

При прочих равных условиях ошибка $\frac{\Delta C}{C}$ зависит от мощности источника $Sb-Be$ следующим образом:

$$\frac{\Delta C}{C} = \frac{\sqrt{N}}{N_{эфф}} \sim \frac{const}{\sqrt{I}}. \quad (8)$$

Представляет интерес рассмотреть роль толщины бериллия в конструкции $Sb-Be$ -источника для повышения чувствительности метода. Из соотношения Комптона для энергии рассеянного γ -кванта следует, что первый акт рассеяния γ -кванта Sb^{124} ядром бериллия на угол $> 2^\circ$ ведет к потере этого γ -кванта для процесса (γn) . Для полного числа нейтронов, рождающихся в шаре Be^9 радиусом R с точечным источником Sb^{124} в центре интенсивностью I , можно записать

$$Q = \frac{I \Sigma \gamma^n}{\Sigma^k} (1 - e^{-\Sigma^k R}), \quad (9)$$

где Σ^k — макроскопическое сечение комptonовского рассеяния на Be^9 , равное $0,078 \text{ см}^{-1}$ при $E_\gamma = 1,67 \text{ Мэв}$; $\Sigma \gamma^n$ — сечение фотоядерного процесса, равное $1,23 \cdot 10^{-4} \text{ см}^{-1}$.

При $R \approx 8 \text{ см}$ Q достигает половины своего значения, однако поток на единицу поверхности бериллия падает и при некоторой толщине достигает максимального значения. Для определения числа делений на поверхности бериллия в воде в зависимости от радиуса шара использовали миниатюрную камеру деления со слоем U^{235} весом 1 мг и площадью 1 см^2 . Источник Sb^{124} в виде шара радиусом 1,5 см распо-

гали в центре бериллиевых шаров, причем толщина бериллия составляла 3, 5, 7,5 и 12 см.

На рис. 6 представлена зависимость числа делений на поверхности бериллия в воде в зависимости от радиуса бериллиевого шара. Из рисунка следует, что применение бериллия толщиной 5—6 см позволяет увеличить чувствительность метода в несколько раз. Еще большие толщины бериллия дают возможность изменить чувствительность метода незначительно, однако при этом резко снижается доза γ -излучения, падающая на детектор.

Согласно оценкам, интенсивность γ -излучения Sb^{124} активностью 1 кюри на поверхности бериллиевого шара радиусом 2 см в воде составляет ~ 350 р/ч, а на поверхности бериллиевого шара радиусом 8 см — ~ 15 р/ч.

Снижение уровня γ -излучения является весьма существенным для увеличения чувстви-

тельности метода, так как при этом становится возможным применять детекторы быстрых нейтронов, например импульсные камеры, наполненные водородом, метаном или He^4 , эффективность которых в присутствии γ -фона резко ухудшается.

В случае применения детектора быстрых нейтронов можно улучшить чувствительность прибора в несколько раз.

Поступила в Редакцию 12/III 1969 г.
В окончательной редакции 16/VI 1969 г.

ЛИТЕРАТУРА

1. Английский патент № 917756, 1963.
2. К. Бекурц, К. Виртц. Нейтронная физика. М., Атомиздат, 1968.
3. В. Векслер и др. Ионизационные методы исследования излучений. М., Гостехтеориздат, 1949.

Использование германиевого детектора для нейтронорадиационного анализа содержания элементов и изотопов

А. М. ДЕМИДОВ, Л. И. ГОВОР, В. А. ИВАНОВ

УДК 539.1.074.55:539.1.06

В настоящей статье обсуждаются особенности и преимущества нейтронорадиационного анализа с использованием $Ge(Li)$ -детекторов и приводятся результаты работ, выполненных на пучке тепловых нейтронов реактора ИРТ-М Института атомной энергии им. И. В. Курчатова.

Как известно, при захвате тепловых нейтронов спектр γ -излучения, испускаемого ядрами, очень сложен, особенно в тяжелых ядрах, что вызывает необходимость использования спектрометра с высоким разрешением. Этот спектр простирается от нескольких килоэлектронвольт до энергии связи нейтрона $B_n = 6 \div 10$ Мэв [1]. При разрешении γ -спектрометра 8—15 кэв в случае легких (атомный вес $A < 70$) и околомагических ядер практически весь спектр разделяется на отдельные линии. Для тяжелых ядер такое разделение имеет место для интенсивных линий в мягкой части спектра ($E_\gamma < 1,5$ Мэв), а также практически для всех линий в жесткой части на участке от B_n примерно до $(B_n - 2)$ Мэв в ядрах с нечетным числом нейтронов и от B_n до $(B_n - \Delta - 2)$ Мэв в четно-четных излучающих ядрах (Δ — энергетическая щель, равная $\sim 1,5$ Мэв для ядер с $A \approx 150$). Наилучшие условия для радиа-

ционного анализа существуют в жесткой части спектра.

В случае тепловых нейтронов чувствительность метода будет определяться величиной $\frac{\sigma k}{A}$, где σ — сечение радиационного захвата; k — выход γ -квантов характерной γ -линии на один захват нейтрона; A — атомный вес ядрамишени, который нужно учитывать при определении весового содержания элементов. Величина σ очень сильно меняется от элемента к элементу (от изотопа к изотопу), что приводит к существенной флуктуации чувствительности для различных элементов (изотопов). На рис. 1 даны величины $\log \frac{\sigma k}{A}$ для всех стабильных элементов. Значения k взяты для наиболее интенсивной линии с $E_\gamma \geq 4$ Мэв. Пунктирными горизонтальными линиями все элементы условно разбиты на три группы. К элементам первой группы (Gd, Cd, H, Dy, Cl, Hg, Sm, Sc, Ti, Co, Mn, Ni, Fe, Cu и др.) метод очень чувствителен и позволяет определять малые содержания этих элементов в образцах. Эта группа содержит два типа ядер — тяжелые с очень большим сечением захвата тепловых нейтронов и ядра с $A \approx 60$, имеющие аномаль-