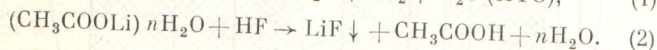
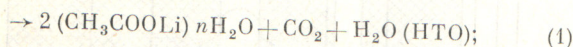
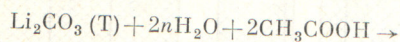


сборке рассчитывали по малогрупповой методике с учетом двух первых столкновений. Определение потоков нейтронов в сборке проводили активационным методом. Для измерения потоков быстрых нейтронов ($E_n \geq 2,6$ МэВ) применяли мишени из никеля и алюминия, а для измерения потоков нейтронов энергией $0,5 \leq E_n < 2,6$ МэВ — мишени из золота и меди с кадмиевым экраном. Активность нейтронных детекторов определялась на основе измерений их β - и γ -излучений [10].

Прямое измерение трития в карбонате лития сцинтилляционным методом. Для определения содержания трития облученный карбонат лития извлекали из сборки и расфасовывали по 0,7 г в полиэтиленовые измерительные кюветы. Образцы готовили по методике [7,8], включающей следующие химические реакции:



После добавления сцинтиллирующего раствора (до 2 мл на пробу) образцы центрифугировали и измеряли на жидкостном сцинтилляционном спектрометре SL-300. Приготовляли по три образца для каждой пробы, а также фоновые и эталонные образцы. Измерение образцов проведено с погрешностью не более 7% при доверительной вероятности 0,95.

В отличие от работы [10] расчет кривой 2 (рис. 2) по двум группам (малогрупповая методика) был проведен с учетом фактора плотности для карбоната лития. Прямое экспериментальное определение концентрации накопленного трития (I) достаточно хорошо согласуется со значениями, рассчитанными на основе данных по активации детекторов нейтронов (3). Наличие «впадины» на кривой 1 при $R = 5$ см можно объяснить отклонением реальной экспериментальной сборки от идеальной сферы, принятой в расчетах.

Резкое увеличение концентрации трития в сборке для $R > 6$ см, скорее всего, следствие того, что парафин, как сильный замедлитель, генерирует тепловые нейтроны в экспериментальную литиевую сборку, основное количество этих нейтронов поглощается граничным слоем карбоната лития (сечение ядерной реакции $^6\text{Li}(n, t)^4\text{He}$ в тепловой области равно 945 б).

Данные нейтронно-активационного анализа и измерения трития, нарабатанного в карбонате лития за разное время облучения и выдержки, показали правильность значений начального потока нейтронов калифорнийского источника и отсутствие значительной диффузии трития из соли. На основе экспериментальных данных распределения концентрации трития по радиусу экспериментальной сборки рассчитан коэффициент тритиевого воспроизводства $K_T = 0,33$, что согласуется с результатом, рассчитанным по двухгрупповой методике (0,35).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Велихов Е. П. и др. В кн.: Труды Всесоюз. конф. по инженерным проблемам термоядерных реакторов. Том 1. Л., изд. НИИЭФА, 1977, с. 5.
2. Leonard B. «Nucl. Techn.», 1973, v. 20, p. 161.
3. Conn R. e.a. «Nucl. Techn.», 1975, v. 26, p. 125.
4. Abdou M., Wittenberg L., Maynard C. «Nucl. Techn.», 1975, v. 26, p. 400.
5. Poyz D. «Успехи физ. наук», 1972, т. 107, вып. 1, с. 106.
6. Spangler P. Report 437, 1965, Cambridge.
7. Dierckx R. «Nucl. Instrum. Methods», 1973, v. 107, p. 397.
8. Herzog R., Kugpers L., Cloth P. e.a. «Nucl. Sci. Engng», 1976, v. 60, p. 169.
9. Bachmann H. e.a. Ibid., 1978, v. 67, p. 74.
10. Евграфова Д. И. и др. [1], т. 2, с. 309.
11. Kotov V. V., Shatalov G. E. In: Proc. US-USSR Symp. Fusion-Fission Reactor. Livermore, 13–16 July 1976.

Поступило в Редакцию 30.01.79

УДК 550.835.41

О возможности использования источника ^{145}Sm для рентгенорадиометрического опробования оловянных руд

СМИРНОВ В. В., ОЧКУР А. П., БОЛОТОВА Н. Г., ГЕДЕОНОВ А. Д., ЛЕМАН Е. П., МИТОВ В. Н., ШУВАЛОВ Б. Н.

При рентгенорадиометрическом опробовании и анализе оловянных руд наиболее часто используют радиоизотопные источники ^{241}Am и ^{147}Pm [1–2]. Однако ^{241}Am не является оптимальным для возбуждения флуоресценции олова, так как его основная γ -линия (60 кэВ) более чем в два раза превышает энергию K -края поглощения олова. Кроме того, при использовании в качестве детекторов кристаллов $\text{NaI} (\text{Tl})$ или пропорциональных счетчиков с ксеноновым наполнением вторичные γ -спектры усложняются пиками вылета пода или ксенона, энергия которых близка к K_{α} -линии олова. Источник ^{147}Pm также малоэффективен при определении олова из-за высокого фона во вторичном γ -спектре, обусловленного тормозным γ -излучением источника.

Из существующих радиоактивных нуклидов для возбуждения флуоресценции олова перспективен ^{145}Sm , обладающий сравнительно высоким периодом полураспада (340 дней) и испускающий в процессе электронного захвата γ -линию 61,2 кэВ и K -серию характеристического рентгеновского излучения прометия (38 кэВ). Тем не менее до настоящего времени не опубликовано сведений об эффективном использовании ^{145}Sm в рентгенорадиометрическом анализе, что обусловлено, по-видимому, трудностями полу-

чения этого нуклида с достаточно высокой удельной активностью и необходимой степенью чистоты.

Нуклид ^{145}Sm образуется по реакции $^{144}\text{Sm}(n, \gamma)^{145}\text{Sm}$ при нейтронном облучении окиси самария Sm_2O_3 , обогащенной ^{144}Sm [3–4]. В получаемом соединении наряду с основным ^{145}Sm присутствуют примеси долгоживущих радионуклидов с высокоэнергетическим γ -излучением. Высокое содержание этих примесей (27,6%) препятствует практическому использованию полученного ^{145}Sm в качестве источника низкого моноэнергетического излучения [3, 4]. В связи с этим были проведены идентификация долгоживущих радиоактивных примесей, присутствующих в облученной окиси самария, и выделение из смеси радионуклидов радиохимически чистого ^{145}Sm .

Для получения ^{145}Sm обогащенную до 92,4% ^{144}Sm окись самария (14,5 мг) облучали в потоке тепловых нейтронов с плотностью $8,4 \cdot 10^{13}$ нейтр./ $(\text{см}^2 \cdot \text{с})$ в течение 30 дней. Анализ γ -спектра облученного соединения после длительной выдержки показал, что в нем в значительном количестве присутствуют только радионуклиды европия (^{152}Eu , ^{154}Eu и ^{155}Eu). Таким образом, получение радиохимически чистого ^{145}Sm сводится к очистке облученного соединения от микропримесей европия. Очистка облученной

окиси самария от европия с помощью электролиза на ртутном катоде позволила выделить ^{145}Sm с радиохимической чистотой 98,63% *.

Испытания соединения ^{145}Sm активностью 1 мКи, помещенного в герметичную алюминиевую капсулу диаметром 20 и высотой 7 мм, осуществляли на моделях оловянных руд. Измерения выполняли в геометрии широких расходящихся пучков. В качестве детекторов использовали пропорциональные счетчики типа СИ11Р с ксеноновым и криптоновым наполнением в датчике БВДП и кристалл NaI (Tl) размером 10×10 мм в датчике БВДС [2].

На рис. 1 приведены измеренные с помощью амплитудного анализатора импульсов вторичные γ -спектры моделей оловянных руд, а также γ -спектры источника ^{145}Sm . Отчетливо наблюдаются фотопики, соответствующие линиям 38,7 и 61,2 кэВ источника ^{145}Sm , фотопики однократно рассеянного γ -излучения и сопровождающие их пики вылета иода и ксенона, а также фотопики K_{α} -линии характеристического рентгеновского излучения олова.

Аналитическая линия олова и пик однократно рассеянного излучения K_{α} -линии прометия практически полностью разрешаются как на сцинтилляционном, так и на пропорциональном счетчике. В обоих случаях фон в области аналитической линии олова (~ 25 кэВ) мал. Его величина определяется в основном вкладом однократно рассеянного γ -излучения, который обусловлен конечным энергетическим разрешением детекторов. В спектрах отсутствуют какие-либо линии других нуклидов, а также тормозное излучение, которое обычно возникает, если нуклид помимо фотонов излучает β -частицы. Это свидетельствует о высокой степени очистки источника ^{145}Sm от посторонних примесей.

На рис. 2 изображены графики зависимости интенсивности вторичного излучения в области аналитической линии олова от его содержания. Значения интенсивности, измеренные на рудных моделях с различным содержанием олова, нормированы на значение интенсивности от модели, имитирующей пустую породу. Интегральная загрузка детекторов во время измерений обеспечивала статистическую значимость отсчетов при экспозиции 5 с и составляла 5000 имп./с для пропорциональных счетчиков и 10000 имп./с для сцинтилляционных. Фактически графики, изображенные на рис. 2, характеризуют контрастность (то есть соотношение сигнал — фон) в области аналитической линии, которая может быть взята в качестве критерия при оценке порога чувствительности метода и сравнения эффективности радионуклидных источников или детекторов. Как следует из рис. 2, применение источника ^{145}Sm при любых детекторах обеспечивает наилучшее соотношение сигнал — фон, а следовательно, и наибольшую чувствительность при определениях олова по сравнению с ^{147}Pm и ^{241}Am . Преимущество ^{145}Sm перед ^{147}Pm , несмотря на равенство энергии их линий, обусловлено существенно более низким фоном в области аналитической линии олова вследствие отсутствия тормозного излучения. По сравнению с ^{241}Am источник ^{145}Sm создает в области K -линии олова не только меньший фон, но и более эффективно возбуждает ее, так как энергия его излучения является более близкой к энергии K -края поглощения олова.

Измерения на моделях оловянных руд с учетом только статистической точности при времени экспозиции 5 с показали, что порог чувствительности к содержанию олова составляет 0,05% для пропорциональных счетчиков и 0,1% для сцинтилляционных детекторов. При увеличении времени экспозиции до 20 с порог чувствительности снижается вдвое. Отметим, что для достижения аналогичных порогов чувствительности к олову с источниками ^{147}Pm и ^{241}Am экспозиция должна быть увеличена не менее чем

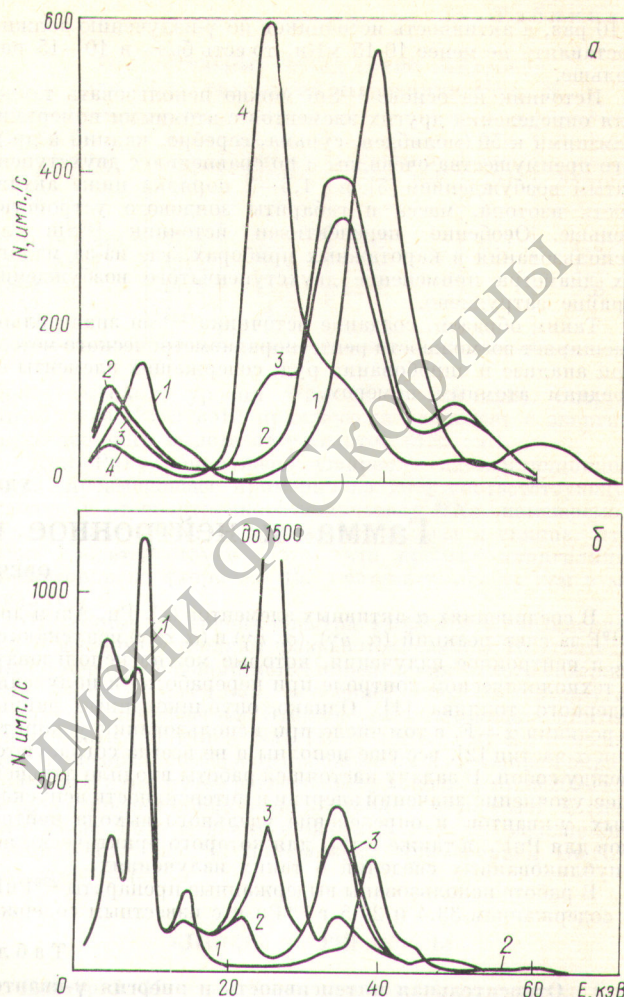


Рис. 1. Первичный и вторичные γ -спектры источника ^{145}Sm , измеренные сцинтилляционным (а) и ксеноновым пропорциональным (б) счетчиками: 1 — γ -спектр ^{145}Sm ; 2—4 — вторичные γ -спектры, полученные на моделях руд с содержанием олова соответственно 0,1 и 10%

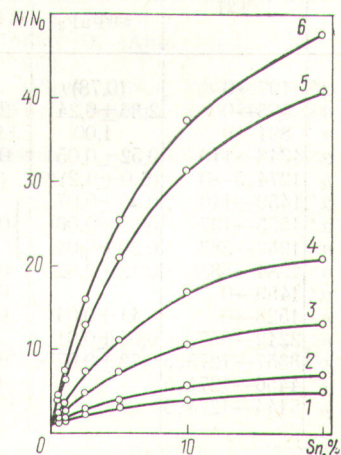


Рис. 2. Аналитические графики, полученные на моделях оловянных руд: 1, 2 — источник ^{147}Pm ; 3 — ^{241}Am ; 4—6 — ^{145}Sm . Измерения проводили кристаллом NaI(Tl) (1, 4), ксеноновым (2, 5) и криптоновым (3, 6) пропорциональными счетчиками (О — экспериментальные точки)

* Авторы выражают благодарность А. В. Малышенкову и А. А. Носову за γ -спектрометрические измерения и определение абсолютной активности источника.

в 10 раз, а активность источников по γ -излучению должна составлять не менее 10–15 мКи, то есть быть в 10–15 раз больше.

Источник на основе ^{145}Sm можно использовать также для определения других элементов с атомными номерами, близкими к 50 (молибден, сурьма, серебро, кадмий и др.). Его преимущества очевидны и по сравнению с двухступенчатым возбуждением [5]: на 1,5–2 порядка ниже активность изотопа, масса и габариты зондового устройства меньше. Особенно перспективен источник ^{145}Sm для использования в каротажных приборах, где из-за малого их диаметра применение двухступенчатого возбуждения крайне затруднено.

Таким образом, создание источника ^{145}Sm значительно расширяет возможности рентгенорадиометрического метода при анализе и опробовании руд, содержащих элементы со средним атомным номером.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Очкур А. П. и др. Гамма-методы в рудной геологии. Л., «Недра», 1976.
2. Леман Е. П. Рентгенорадиометрический метод опробования месторождений цветных и редких металлов. Л., «Недра», 1978.
3. Румянцев С. В. и др. «Атомная энергия», 1963, т. 15, вып. 6, с. 511.
4. Румянцев С. В., Кулиш Е. Е., Борисов О. И. Источники низкоэнергетического излучения в неразрушающем контроле. М., Атомиздат, 1976.
5. Жуковский А. Н. и др. «Геофиз. аппаратура», 1978, вып. 65, с. 120.

Поступило в Редакцию 22.02.79
В окончательной редакции 16.07.79

УДК 539.17.3

Гамма- и нейтронное излучения фторидов ^{239}Pu

ОВЕЧКИН В. В.

В соединениях α -активных элементов (U, Pu, Am и др.) с ^{19}F за счет реакций $(\alpha, p\gamma)$, $(\alpha, n\gamma)$ и $(\alpha, \alpha'\gamma)$ испускаются γ - и нейтронное излучения, которые можно использовать в технологическом контроле при переработке и получении ядерного топлива [1]. Однако опубликованные данные о реакции $\alpha + \text{F}$, в том числе при использовании ускорителей α -частиц [2], все еще неполны и не всегда согласуются между собой. В задачу настоящей работы входило дальнейшее уточнение значений энергии и интенсивности испускаемых γ -квантов и определение удельного выхода нейтронов для PuF_4 , а также PuF_3 , для которого практически нет опубликованных сведений о таких излучениях.

В работе использованы выдержанные препараты $^{239}\text{PuF}_4$ с содержанием 33,4 и 20,5 г ^{239}Pu и с известным содержа-

нием других изотопов Pu, на которые введены поправки в исследуемый эффект. Кроме того, по способу, описанному в работе [3], были приготовлены препараты $^{239}\text{PuF}_3$ и $^{239}\text{PuO}_2$ с фтором (1,1 и 2,5%) общей массой по 1 г. Спектры измеряли Ge(Li)-детектором с чувствительным объемом $\sim 50 \text{ см}^3$; гамма-спектрометр имел энергетическое разрешение 4,2 кэВ по γ -излучению ^{60}Co ($E_\gamma = 1332 \text{ кэВ}$). Градуировку эффективности $\epsilon_\gamma = f(E_\gamma)$ осуществляли при помощи образцовых гамма-излучателей ОСГИ (В/О «Изотоп»), аттестованных по интенсивности с погрешностью не более 3%.

Результаты измерений. Энергия и относительная интенсивность γ -линий по нашим измерениям представлены в таб. 1, где для сравнения приведены данные для $^{241}\text{AmF}_3$ из работы [4]. Как видно, результаты измерений интенсивности для этих соединений хорошо согласуются.

Обращает на себя внимание сравнительно малое различие между выходами γ -излучений энергией 197 и 1357 кэВ, которые соответствуют разрядке уровней ^{19}F , отличающихся по энергии почти на 1400 кэВ. Этот факт, возможно, указывает на относительно малый вклад образования компаунд-ядра ^{23}Na в реакции (α, α') по сравнению с вкладом прямых взаимодействий α -частиц с ядрами ^{19}F .

В целях определения выхода нейтронов из PuF_3 для одной и той же геометрии опыта проведены длительные (более 4,5 лет) измерения отношений площадей γ -пику $S_t/S_i = S_{1275}/S_{891}$ и S_{511}/S_{583} . Зависимость этих величин от параметра $x = 1 - \exp(-\lambda t)$ (t — время; λ — постоянная распада ^{22}Na) представлена на рисунке. Найдены как начальные, так и конечные значения при $x = 1$ ($t = \infty$), что дало возможность использовать их для определения выхода нейтронов I_n :

$$I_n = \frac{S_\infty - S_0}{k\epsilon} = \frac{S_t}{k\epsilon} \left[\left(\frac{S_\infty - S_0}{S_i} \right) / \left(\frac{S_t}{S_i} \right) \right]$$

(с учетом схемы распада ^{22}Na $k = 1$ для $S_t/S_i = S_{1275}/S_{891}$ и $k = 1,78$ для $S_t/S_i = S_{511}/S_{583}$).

Отдельно $S_t = S_{1275}$ и S_{511} измеряли в условиях хорошей геометрии при использовании достаточно точных значений эффективности регистрации ϵ . В результате таких определений по аннигиляционному и γ -излучению удельный выход нейтронов для трифторида ^{239}Pu составил $(4,3 \pm 0,3) \cdot 10^3$ нейтр. $\cdot \text{с}^{-1} \cdot \text{г}^{-1}$. Контрольные измерения с нейтрон-

Таблица 1

Относительная интенсивность и энергия γ -квантов для фторидов ^{239}Pu и $^{241}\text{AmF}_3$

Энергия γ -квантов, кэВ	Реакция	γ -Переход согласно монографии [2]	Относительная интенсивность		
			Настоящая работа		Данные работы [4]*
			$^{239}\text{PuF}_3$	$^{239}\text{PuF}_4$	
197.0 ± 0.5	α, α'	197 → 0	(0,78)		
583 ± 0.5	α, n	583 → 0	2,36 ± 0,24	2,56 ± 0,20	2,50
891 ± 0.5	α, n	891 → 0	1,00	1,00	1,00
1238 ± 0.7	α, α'	1348 → 110	0,52 ± 0,05	0,55 ± 0,06	0,50
1274.5 ± 0.3	α, p	1274.5 → 0	(6,0 ± 0,2)**	(6,0 ± 0,2)**	
1349 ± 1	α, α'	1459 → 110	0,43 ± 0,07		
1357 ± 1	α, α'	1555 → 197	0,35 ± 0,06	} 0,66 ± 0,08***	} 0,73***
1369 ± 1	α, n	1952 → 583	0,20 ± 0,04		
1400 ± 0.5	α, n	1984 → 583	0,12 ± 0,02	0,14 ± 0,02	0,16
1459 ± 1	α, α'	1459 → 0		0,10 ± 0,03	
1528 ± 0.3	α, n	1528 → 0	0,41 ± 0,04	0,45 ± 0,05	0,39
1555 ± 1	α, n	2212 → 657	0,04 ± 0,01		0,08
2082,0 ± 0.5	α, p	3357 → 1275,5	0,72 ± 0,07	0,75 ± 0,08	0,67
3180 ± 1	α, p	4456 → 1274,5		0,19 ± 0,03	0,19
3869	α, p	5144 → 1274,5			0,004

* Погрешности результатов не превышают 20%.

** Дано значение для свежеприготовленного препарата.

*** Приведено суммарное значение для квантов 1349, 1357 и 1369 кэВ.